



**HAL**  
open science

# Caractérisations spatio-temporelles de milieux plasmagènes à haute énergie par diffusion laser

Mamadou Sankhe

► **To cite this version:**

Mamadou Sankhe. Caractérisations spatio-temporelles de milieux plasmagènes à haute énergie par diffusion laser. Autre. Université d'Orléans, 2019. Français. NNT : 2019ORLE3028 . tel-03123986

**HAL Id: tel-03123986**

**<https://theses.hal.science/tel-03123986v1>**

Submitted on 28 Jan 2021

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**ÉCOLE DOCTORALE**

**ENERGIE, MATERIAUX, SCIENCES DE LA TERRE ET DE L'UNIVERS**

Laboratoire GREMI

**THÈSE** présentée par :

**Mamadou Lamine SANKHE**

soutenue le : **09/05/2019**

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'Université d'Orléans**

Discipline / Spécialité : Physique des plasmas

**Caractérisations spatio-temporelles de milieux plasmagènes  
transitoires à hautes énergies**

**THESE dirigée par :**

**Stéphane PELLERIN**

Professeur, Université d'Orléans

**Rapporteurs :**

**Jörg HERMANN**

Directeur de recherche CNRS, Université d'Aix Marseille

**Jean-Marie JOUVARD**

Professeur, Université de Bourgogne

---

**JURY**

**Philippe GILLARD**

Professeur, Université d'Orléans, Président du jury

**Krzysztof DZIERZEGA**

Maître de conférences Hab, Université de Jagellon (PI)

**Stéphane PELLERIN**

Professeur, Université d'Orléans

**Jean-Baptiste SIRVEN**

Ingénieur de recherche, CEA Saclay

**Flavien VALENSI**

Maître de conférences, Université de Toulouse

**Maxime WARTEL**

Maître de conférences, Université d'Orléans



# Remerciements

Je tiens à remercier toutes les personnes qui ont participé, de près ou de loin, à la réalisation de cette thèse.

Je remercie particulièrement mon directeur de thèse, professeur Stéphane PELLERIN, pour m'avoir fait confiance et m'avoir donné l'opportunité de faire cette thèse durant laquelle il n'a ménagé aucun effort pour que je puisse mener ce travail de recherche dans les meilleures conditions. Je le remercie aussi pour ses nombreuses invitations à passer des moments de convivialité et de partage.

Mes remerciements vont aussi à Mme. Chantal LEBORGNE, ex-directrice du GREMI et à Mme. Anne-Lise THOMANN, actuelle directrice, pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire. Un grand merci aussi à tous les membres du laboratoire.

Un grand merci à Mme. Nadia PELLERIN, directrice de l'antenne scientifique de Bourges, qui a été d'une grande aide pour moi et ce depuis mes stages de Master jusqu'à maintenant.

Je remercie vivement Maxime WARTEL, co-encadrant de cette thèse, qui m'a été d'une grande aide à travers son expérience, ses conseils et tous les efforts qu'il a consentis pour le succès de cette thèse.

Mes remerciements vont également à Gilles CHARLES, technicien au laboratoire, qui a été d'une très grande aide pour construire des dispositifs expérimentaux dans le cadre de cette thèse ou d'évènements de vulgarisation scientifique.

Je remercie le professeur Krzysztof Dzierżęga, du département de Photonique de l'Université Jagellonne de Cracovie pour m'avoir accueilli à deux reprises et toujours chaleureusement dans son laboratoire. Merci pour son soutien et pour m'avoir fait profiter de son expérience dans la LIBS et la diffusion Thomson. Je le remercie également, ainsi que sa femme Maria, pour m'avoir fait visiter le musée d'Auschwitz, un symbole de la barbarie humaine. J'en profite aussi pour remercier tous les membres de son laboratoire comme Alexandra et Witek, mais aussi le doctorant Tomek pour leur aide lors des expériences et leur accueil chaleureux à Cracovie.

J'exprime également toute ma reconnaissance à Mr. Jörg HERMANN et à Mr. Jean-Marie JOUVARD pour avoir accepté de participer à ce jury de thèse en tant que rapporteurs.

Je remercie Mrs. Philippe GILLARD, Jean-Baptiste SIRVEN et Flavien VALENSI pour avoir accepté de faire partie du jury de thèse en tant qu'examineurs, et Mr. Stéphane BERNARD pour son aide dans l'étude de l'allumage de poudres.

Je remercie aussi les membres du département Mesures Physiques de l'IUT de Bourges, notamment sa directrice Mme. Laurence JOSSERAND et l'ancien directeur de l'IUT Mr. Gérard POISSON pour m'avoir confié des missions complémentaires d'enseignement pendant ces 3 années de thèse. Un très grand merci aussi à Mr. Jean-Claude HARGÉ pour son aide pendant la préparation des séances de travaux pratiques.

Merci aux autres membres Berruyers du laboratoire comme Nuno CERQUEIRA, François FAUBERT, Véronique MASSEREAU, Isabelle GIRAUD et Steve RUDZ pour l'ambiance de travail agréable et leur soutien. Merci à mes anciens collègues doctorants Ali et Quentin, et au doctorant William, mon collègue de bureau à Bourges, pour leur amitié et la très bonne ambiance de travail.

Je remercie tous mes amis et anciens camarades de classes, entre autres, Mamadou Mbaye (Moudou), Babacar Diallo, Sotheara Chuon et Daouda Sow, pour leur aide et leur soutien.

Enfin, je remercie mes parents pour leurs prières et leur soutien.

*Cette thèse est dédiée à feu Mamour Sankhé,  
Maître de Conférences à l'Université Cheikh Anta Diop de Dakar*

# Table des matières

Liste des figures.....	ix
Liste des tableaux.....	xiii
Liste des symboles.....	xiv
Liste des constantes.....	xvi
Liste des sigles.....	xvi
Introduction générale.....	2
Contexte de l'étude.....	3
<b>1 Généralités sur les plasmas .....</b>	<b>6</b>
1.1 Les grandeurs caractéristiques d'un plasma .....	6
1.2 Les processus collisionnels et radiatifs.....	8
1.2.1 Les processus collisionnels.....	8
1.2.1.1 Collisions élastiques.....	8
1.2.1.2 Collisions inélastiques.....	8
1.2.2 Les processus radiatifs.....	10
1.2.2.1 Les transitions libres-libres.....	10
1.2.2.2 Les transitions libres-liés.....	10
1.2.2.3 Les transitions liés-liés.....	11
1.3 Équilibre Thermodynamique Complet (ETC).....	12
1.3.1 Les lois de distribution de la matière .....	12
1.3.1.1 Distribution de Maxwell.....	13
1.3.1.2 Loi de Boltzmann .....	14
1.3.1.3 Loi de Saha.....	14
1.3.1.4 Loi de Dalton.....	15
1.3.1.5 Loi d'électro-neutralité .....	15
1.3.2 Les lois du rayonnement .....	16
1.3.2.1 Loi de Planck .....	16
1.3.2.2 Loi de déplacement de Wien .....	16
1.3.2.3 Loi de Stefan-Boltzmann.....	16
1.4 Équilibre Thermodynamique Local (ETL).....	17
1.4.1 Critères d'ETL .....	17
1.4.1.1 Cas d'un plasma homogène et stationnaire.....	17
1.4.1.2 Cas d'un plasma homogène et transitoire.....	18

1.4.1.3	Cas d'un plasma inhomogène et transitoire.....	19
<b>2</b>	<b>Diagnostic des plasmas : Méthodes mises en œuvre.....</b>	<b>22</b>
2.1	La Spectroscopie Optique d'Emission (SOE).....	22
2.1.1	Spectre continu.....	22
2.1.2	Spectre discret.....	23
2.1.3	Auto-absorption.....	23
2.1.4	Élargissement des raies spectrales.....	25
2.1.4.1	Élargissement naturel.....	25
2.1.4.2	Élargissement Doppler.....	25
2.1.4.3	Élargissement par effet de pression.....	26
2.1.4.4	Élargissement instrumental ou fonction d'appareil.....	29
2.1.4.5	Profil résultant des élargissements.....	30
2.1.5	Méthodes de diagnostic par SOE.....	31
2.1.5.1	Inversion d'Abel.....	31
2.1.5.2	Détermination de $T_{ex}$ par la méthode du graphe de Boltzmann.....	32
2.1.5.3	Détermination de $T_{ion}$ par graphe de Saha-Boltzmann.....	33
2.1.5.4	Détermination de $N_e$ par mesure des élargissements Stark.....	34
2.2	La diffusion Thomson (DT).....	34
2.2.1	Principe de la diffusion par un électron.....	35
2.2.2	Diffusion par N électrons.....	39
2.2.2.1	Expression générale.....	39
2.2.2.2	Approximation de Salpeter.....	42
2.2.3	Aspect du spectre de diffusion.....	43
2.2.3.1	Diffusion Thomson collective.....	44
2.2.3.2	Diffusion Thomson non collective.....	45
2.2.3.3	Diffusion Thomson dans les plasmas.....	46
2.2.4	Chauffage du plasma par le laser sonde.....	47
<b>3</b>	<b>Étude d'un plasma de décharge par SOE.....</b>	<b>50</b>
3.1	Introduction.....	50
3.2	Contexte de l'étude.....	50
3.3	Évaluation des paramètres d'inflammation : EMI et délais d'allumage.....	52
3.3.1	EMI : Définition et Évaluation.....	52
3.3.2	Tube de Hartmann modifié.....	53
3.3.3	Les EMIs de poudres métalliques Al, AlSi <sub>10</sub> Mg et Mg.....	55
3.3.4	Délais d'allumage.....	56

3.3.5	Vitesse de flamme.....	59
3.3.6	En guise de conclusion .....	59
3.4	Décharge à courant continu.....	60
3.4.1	Structure d'une décharge d'arc.....	61
3.4.2	Mécanismes d'émission à la cathode .....	61
3.5	Dispositif expérimental .....	63
3.5.1	Le générateur de décharge .....	64
3.5.2	Les électrodes utilisées .....	65
3.5.3	Le spectromètre .....	66
3.5.4	La caméra ICCD .....	67
3.5.5	Correction du gain de la caméra.....	68
3.5.6	Calibration en intensité.....	69
3.6	Évolutions de la décharge.....	70
3.6.1	Aspect du plasma en fonction de la durée de décharge .....	70
3.6.2	Évolution spatio-temporelle de la décharge de durée 100 $\mu$ s .....	73
3.7	Le spectre d'émission du plasma de décharge .....	74
3.8	Calcul de la température d'excitation.....	76
3.9	Calcul de la densité électronique .....	77
3.10	Résultats.....	78
3.10.1	Évolutions spatio-temporelles de $T_{ex}$ et de $N_e$ à l'Anode .....	79
3.10.2	Évolutions spatio-temporelles de $T_{ex}$ et de $N_e$ dans la Colonne.....	80
3.10.3	Évolutions spatio-temporelles de $T_{ex}$ et de $N_e$ à la Cathode.....	82
3.10.4	Disparités dans les différentes zones du plasma .....	83
3.10.5	Évaluation de l'ETL au centre des 3 zones d'étude .....	84
3.10.6	Composition du plasma de la colonne de décharge .....	86
3.10.7	Température du gaz .....	87
3.11	Autres résultats : caractéristiques de la flamme de combustion.....	89
3.11.1	Mesure pyrométrique de la température des particules .....	89
3.11.2	Mesure spectroscopique de la température de flamme .....	91
3.11.3	Discussion.....	93
3.12	Conclusion et Perspectives .....	95
3.12.1	Conclusion.....	95
3.12.2	Limitations de la SOE .....	96
<b>4</b>	<b>Étude des Plasmas Induits par Laser (PILs) par SOE et DT.....</b>	<b>99</b>



4.1	Introduction .....	99
4.2	Claquage et Ablation.....	100
4.2.1	Plasma de claquage.....	100
4.2.2	Plasma d'ablation .....	101
4.3	Seuils de claquage et d'ablation .....	102
4.4	Méthodes de diagnostic des PILs.....	105
4.4.1	LIBS et SOE.....	105
4.4.2	Diffusion Thomson (DT) .....	107
4.5	Conclusion .....	108
4.6	Dispositif expérimental.....	108
4.6.1	Le dispositif de génération du PIL .....	110
4.6.1.1	Le laser « générateur » .....	110
4.6.1.2	Le « réacteur » .....	111
4.6.2	Le dispositif de caractérisation du PIL.....	112
4.6.2.1	Le laser « sonde » .....	112
4.6.2.2	Le système de collection des rayonnements de SOE et de DT .....	112
4.6.3	Le dispositif de contrôle de l'acquisition des expériences .....	113
4.6.3.1	Le contrôle spatial de l'acquisition .....	113
4.6.3.2	Le contrôle temporel des acquisitions.....	113
4.6.3.3	Le contrôle de l'apport d'énergie des lasers .....	115
4.6.4	Acquisition et traitement des données .....	118
4.7	Stabilisation spatiale du plasma .....	121
4.8	Étude du plasma d'argon .....	124
4.8.1	Introduction.....	124
4.8.2	Évolution du plasma d'argon par imagerie .....	125
4.8.3	Mesure des paramètres du plasma d'argon par SOE.....	126
4.8.3.1	Spectres d'émissions du plasma d'argon.....	127
4.8.3.2	Mesure de température d'excitation par graphe de Boltzmann.....	128
4.8.3.3	Mesure de densité électronique par élargissement Stark .....	132
4.8.4	Mesure des paramètres du plasma d'argon par DT .....	134
4.8.4.1	Spectres de diffusion Thomson du plasma d'argon .....	134
4.8.4.2	Mesure des paramètres électroniques par diffusion Thomson .....	136
4.8.5	Effets du laser sonde sur le plasma d'argon.....	139
4.8.6	Disparités entre les mesures par SOE et par DT .....	141
4.8.7	Vérification de la linéarité des paramètres Stark en fonction de $N_e$ .....	143

4.8.7.1	Introduction .....	143
4.8.7.2	Les différentes sources d'élargissement .....	144
4.8.7.3	Procédure expérimentale .....	144
4.8.7.4	Variations temporelles des raies d'argon .....	146
4.8.7.5	Vérification de l'auto-absorption.....	147
4.8.7.6	Variations temporelles des spectres de diffusion Thomson .....	148
4.8.7.7	Résultats .....	149
4.8.7.8	Conclusion.....	154
4.8.8	Critères de vérification de l'ETL .....	155
4.8.9	Conclusion .....	156
4.9	Étude du plasma de cuivre .....	157
4.9.1	Introduction.....	157
4.9.2	Évolution du plasma de cuivre par imagerie .....	158
4.9.3	Évolution des cratères d'ablation par imagerie.....	159
4.9.4	Mesure des paramètres du plasma de cuivre par SOE.....	162
4.9.4.1	Spectres d'émissions du plasma de cuivre .....	163
4.9.4.2	Mesure de température d'excitation par graphe de Boltzmann.....	163
4.9.4.3	Mesure de densité électronique par élargissement Stark .....	165
4.9.5	Mesure des paramètres du plasma de cuivre par DT .....	166
4.9.5.1	Spectres de diffusion Thomson du plasma de cuivre .....	167
4.9.5.2	Mesure des paramètres électroniques par DT .....	169
4.9.6	Disparités entre les mesures par SOE et par DT .....	169
4.9.7	Critères de vérification de l'ETL .....	171
4.9.8	Conclusion.....	173
4.10	Conclusion sur l'étude des PILs.....	173
<b>5</b>	<b>Conclusion générale.....</b>	<b>176</b>
5.1	Synthèse .....	176
5.2	Influence des temps de relaxations sur l'ETL .....	178
<b>6</b>	<b>Perspectives.....</b>	<b>181</b>
6.1	Validation des méthodes spectroscopiques .....	181
6.2	Évaluation du déséquilibre thermique : STR.....	182
6.2.1	Principe du Spectromètre à Trois Réseaux (STR) .....	183
6.2.2	Résultats et conclusions préliminaires .....	185
6.3	Études de paramètres Stark de raies spectrales.....	187
6.4	Évolution du dispositif expérimental : LIBS-Raman-LIF .....	188

<b>7</b>	<b>Bibliographie.....</b>	<b>190</b>
<b>8</b>	<b>Annexe 1 : Générateur d'arc.....</b>	<b>203</b>
<b>9</b>	<b>Annexe 2 : Logiciel « OMA Voigt » .....</b>	<b>206</b>
<b>10</b>	<b>Annexe 3 : Logiciel « DThomson ».....</b>	<b>207</b>
<b>11</b>	<b>Annexe 4 : Liste des communications et des publications durant la thèse .....</b>	<b>209</b>

# Liste des figures

Figure 0-1 : Diagramme de phase des plasmas : température en fonction de la densité électronique. ....	3
Figure 1-1 : Exemple de distribution maxwellienne des vitesses de particules d'argon en fonction de la température. ...	13
Figure 2-1 : Exemple de deux raies d'argon neutre, l'une non auto-absorbée et l'autre auto-inversée, enregistrées latéralement. ....	24
Figure 2-2 : Détermination de la fonction d'appareil ; Réseau de 1200 traits.mm <sup>-1</sup> ; e <sub>spect</sub> = 30 μm. ....	30
Figure 2-3 Schéma du principe d'inversion d'Abel. ....	31
Figure 2-4 : Système de coordonnées sphériques de la diffusion. ....	35
Figure 2-5 : Schéma de diffusion et vecteur d'onde différentiel. ....	37
Figure 2-6 : Schéma de diffusion de type dipolaire. ....	39
Figure 2-7 : Évolution des parties réelle et imaginaire de la fonction de dispersion W(x). ....	43
Figure 2-8 : Évolution des facteurs de forme électronique et ionique en fonction de α pour une diffusion Thomson collective. ....	44
Figure 2-9 : Évolution du facteur de forme ionique en fonction de T <sub>e</sub> /T <sub>i</sub> pour une diffusion Thomson collective. ....	45
Figure 2-10 : Facteur de forme pour une diffusion Thomson non collective ; α = 0,2. ....	46
Figure 3-1 : Exemples d'EMI de quelques poudres en fonction de la probabilité d'inflammation. ....	53
Figure 3-2 : Tube de Hartmann modifié ; Vol = 1,6 L. ....	54
Figure 3-3 : Signal sur le photodétecteur rapide, à 750 nm, pour la combustion de poudre d'aluminium. ....	57
Figure 3-4 : Délais d'allumage pour différentes poudres métalliques ; E <sub>arc</sub> = 16 mJ. ....	58
Figure 3-5 : Caractéristique courant (I) - tension (V) et différents régimes de la décharge à courant continu ; V <sub>D</sub> : potentiel disruptif ; V <sub>l</sub> : potentiel d'entretien. ....	60
Figure 3-6 : Schéma de la structure de la décharge. ....	61
Figure 3-7 : Dispositif expérimental du plasma de décharge. ....	63
Figure 3-8 : Photo du dispositif expérimental. ....	64
Figure 3-9 : Paramètres électriques de la décharge en régime d'arc ; τ <sub>arc</sub> = 100 μs. ....	65
Figure 3-10 : Aspect de la pointe de la cathode par MEB. ....	66
Figure 3-11 : Correction du gain de la caméra ; Réseau de 2400 traits.mm <sup>-1</sup> ; G <sub>0</sub> = 50 ; t <sub>exp</sub> = 11 s ; N <sub>acc</sub> = 20. ....	69
Figure 3-12 : Coefficient de calibration en énergie en fonction de la longueur d'onde. ....	70
Figure 3-13 : Aspect du plasma en fonction de la durée τ <sub>arc</sub> de décharge ; d <sub>elec</sub> = 4 mm ; I <sub>arc</sub> = 4 A ; U <sub>arc</sub> = 80 V. Le moment d'observation après l'allumage t <sub>gd</sub> est indiqué à droite des images. ....	72
Figure 3-14 : Évolution spatio-temporelle du plasma de décharge de l'allumage à l'extinction dans l'air ; d <sub>elec</sub> = 4 mm ; τ <sub>arc</sub> = 100 μs ; I <sub>arc</sub> = 4 A ; U <sub>arc</sub> = 80 V ; t <sub>exp</sub> = 10 μs. ....	74
Figure 3-15 : Spectres enregistrés sur l'axe de la colonne (Y = 0 mm) dans chaque zone de la décharge ; τ <sub>arc</sub> = 100 μs ; t <sub>gd</sub> = 50 μs ; t <sub>exp</sub> = 15 μs ; e <sub>spect</sub> = 50 μm ; Réseau de 2400 traits.mm <sup>-1</sup> . ....	76
Figure 3-16 : Graphe de Boltzmann au centre de la zone anodique (A) ; t <sub>gd</sub> = 20 μs ; τ <sub>arc</sub> = 100 μs ; r = 0 mm. ....	77
Figure 3-17 : Évolution spatio-temporelle de la température d'excitation de W I dans la zone anodique. ....	79
Figure 3-18 : Évolution spatio-temporelle de la densité électronique dans la zone anodique. ....	80
Figure 3-19 : Évolution spatio-temporelle de la température d'excitation de W I dans la colonne. ....	81
Figure 3-20 : Évolution spatio-temporelle de la densité électronique dans la colonne. ....	81
Figure 3-21 : Évolution spatio-temporelle de la température d'excitation de W I dans la zone cathodique. ....	82
Figure 3-22 : Évolution spatio-temporelle de la densité électronique dans la zone cathodique. ....	83
Figure 3-23 : Évolution des paramètres du plasma sur l'axe (r = 0 mm), dans les 3 zones d'étude. ....	84
Figure 3-24 : Évolutions de la densité électronique expérimentale et de la densité électronique minimale du critère de McWhirter en fonction du temps ; r = 0 mm. ....	85
Figure 3-25 : Vérification spatio-temporelle du critère de McWhirter dans la colonne. ....	86
Figure 3-26 : Composition du plasma dans la colonne à trois instants après l'allumage. ....	87
Figure 3-27 : Spectroscopie moléculaire de l'étincelle : superposition des spectres moléculaires enregistrés autour de 385 nm, et simulés par SPECAIR ; τ <sub>arc</sub> = 50 μs ; E <sub>arc</sub> = 16 mJ ; t <sub>gd</sub> = 10 μs ; t <sub>exp</sub> = 50 μs. ....	88
Figure 3-28 : Pyrométrie de la flamme : évolution temporelle de la température des particules d'Al ; ....	90

Figure 3-29 : Pyrométrie de la flamme : évolution de la température des particules d'Al en fonction de la concentration de poudre ; $\phi = 25 \mu\text{m}$ ; $\tau_{\text{arc}} = 50 \mu\text{s}$ ; $E_{\text{arc}} = 16 \text{ mJ}$ .....	91
Figure 3-30 : Spectroscopie de flamme avec AIO : spectres moléculaires expérimental et simulé de AIO entre 460 nm et 540 nm ; $c = 417 \text{ mg.L}^{-1}$ ; $\phi = 25 \mu\text{m}$ ; $\tau_{\text{arc}} = 50 \mu\text{s}$ ; $E_{\text{arc}} = 16 \text{ mJ}$ ; $t_{\text{gd}} = 250 \text{ ms}$ .....	92
Figure 3-31 : Spectroscopie de flamme avec AIO ; $c = 208 \text{ mg.L}^{-1}$ ; $\phi = 27 \mu\text{m}$ ; $\tau_{\text{arc}} = 50 \mu\text{s}$ ; $E_{\text{arc}} = 16 \text{ mJ}$ .....	92
Figure 3-32 : Évolution des températures pyrométriques spectroscopiques en fonction de la concentration de poudre ; $\phi = 25 \mu\text{m}$ ; $\tau_{\text{arc}} = 50 \mu\text{s}$ ; $E_{\text{arc}} = 16 \text{ mJ}$ .....	93
Figure 3-33 : Représentation schématique de la combustion de particules micrométriques d'aluminium. ....	94
Figure 4-1 : Schéma de principe d'un plasma de claquage. ....	101
Figure 4-2 : Schéma de principe d'un plasma d'ablation. ....	102
Figure 4-3 : Évolution de la probabilité de claquage pour différentes pressions et irradiances.....	103
Figure 4-4 : Seuils de claquage à 50 % de l'argon et de l'azote à différentes pressions.....	104
Figure 4-5 : Schéma de principe de la LIBS.....	106
Figure 4-6 : Schéma de principe de la diffusion Thomson. ....	108
Figure 4-7 : Dispositif expérimental pour la création et la caractérisation de plasmas de claquage et d'ablation. ....	109
Figure 4-8 : Photo du dispositif expérimental. ....	110
Figure 4-9 : Le réacteur avec illustration d'un plasma d'argon induit par laser Nd : YAG à 532 nm à pression atmosphérique. ....	111
Figure 4-10 : Modèle de synchronisation du générateur de délais "DG645". ....	115
Figure 4-11 : Stabilité temporelle des énergies des lasers. ....	117
Figure 4-12 : Énergie du laser « générateur » en fonction du décalage QS-FL pour les deux modes de déclenchement. ....	117
Figure 4-13 : Apport d'énergie des lasers.....	118
Figure 4-14 : Effet du coefficient de lissage sur les spectres enregistrés.....	120
Figure 4-15 : Géométrie de création, de sondage et d'observation du plasma. ....	121
Figure 4-16 : Stabilisation spatiale du plasma ; $\lambda = 532 \text{ nm}$ .....	123
Figure 4-17 : Plasma de claquage dans l'argon à pression atmosphérique ; $t_{\text{gd}} = 500 \text{ ns}$ .....	123
Figure 4-18 : Intensité des plasmas successifs en fonction de la position spatiale X ; Y = 0 mm ; $t_{\text{gd}} = 500 \text{ ns}$ .....	124
Figure 4-19 : Évolution spatio-temporelle de la plume de plasma d'argon ; $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ ; $t_{\text{exp}} = 3 \%$ du délai.....	126
Figure 4-20 : Vitesse d'expansion du plasma d'argon dans les axes X et Y en fonction du temps ; $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .....	126
Figure 4-21 : Spectres d'émission (intégrés en Z) de quelques raies d'Ar I en fonction du temps ; X = 0 mm ; Y = 0 mm ; Réseau de $1200 \text{ traits.mm}^{-1}$ ; $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .....	127
Figure 4-22 : Spectres d'émission (intégrés en Z) de quelques raies d'Ar II en fonction du temps ; X = 0 mm ; Y = 0 mm ; Réseau de $1200 \text{ traits.mm}^{-1}$ ; $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .....	128
Figure 4-23 : Graphes de Boltzmann ; $t_{\text{gd}} = 550 \text{ ns}$ ; X = 0 mm ; r = 0 mm ; $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .....	130
Figure 4-24 : Variations spatio-temporelles de la température d'excitation $T_{\text{ex}}^{\text{Ar I}}$ d'Ar I ; X = 0 mm ; Z = 0 mm ; $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .....	131
Figure 4-25 : Variations spatio-temporelles de la température d'excitation $T_{\text{ex}}^{\text{Ar II}}$ d'Ar II ; X = 0 mm ; Z = 0 mm ; $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .....	131
Figure 4-26 : Variations spatio-temporelles de la densité électronique $N_e^{\text{Ar I}}$ issue de la raie 696,5 nm d'Ar I ; X = 0 mm ; Z = 0 mm ; $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .....	133
Figure 4-27 : Variations spatio-temporelles de la densité électronique $N_e^{\text{Ar II}}$ issue de la raie 480,6 nm d'Ar II ; X = 0 mm ; Z = 0 mm ; $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .....	133
Figure 4-28 : Variations temporelles des spectres de diffusion Thomson ; X = 0 mm ; Z = 0 mm ; $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ ; $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ ; Réseau de $1200 \text{ traits.mm}^{-1}$ .....	135
Figure 4-29 : Variations temporelles des spectres de diffusion Thomson ; X = 0 mm ; r = 0 mm ; $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ ; $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ ; Réseau de $1200 \text{ traits.mm}^{-1}$ .....	136
Figure 4-30 : Variations spatio-temporelles de la température électronique $T_e^{\text{DT}}$ par diffusion Thomson ; X = 0 mm ; Z = 0 mm ; $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ ; $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .....	137
Figure 4-31 : Variations spatio-temporelles de la densité électronique $N_e^{\text{DT}}$ par diffusion Thomson ; X = 0 mm ; Z = 0 mm ; $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ ; $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .....	138
Figure 4-32 : Variations temporelles des paramètres du plasma mesurés par DT ; X = 0 mm ; r = 0 mm ; $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ ; $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .....	138

Figure 4-33 : Variations spatiales de $T_e^{DT}$ en fonction de $E_S$ ; $X=0$ mm ; $t_{gd} = 10$ $\mu$ s ; $F_G = 44,9$ kJ.cm <sup>-2</sup> .....	140
Figure 4-34 : Variations spatiales de $N_e^{DT}$ en fonction de $E_S$ ; $X=0$ mm ; $t_{gd} = 10$ $\mu$ s ; $F_G = 44,9$ kJ.cm <sup>-2</sup> .....	140
Figure 4-35 : Variations spatio-temporelles des températures du plasma d'argon déterminées par SOE et par DT.....	141
Figure 4-36 : Variations spatio-temporelles des densités électroniques du plasma d'argon déterminées par SOE et par DT.....	143
Figure 4-37 : Raie 696,5 nm d'Ar I : Évolution du FWHM du profil de Voigt de la raie en fonction de la pression d'argon pour différents délais $t_{gd}$ après l'allumage.....	145
Figure 4-38 : Variations temporelles des raies d'argon au centre du plasma ; Pression d'argon = 0,4 bar ; $X = 0$ mm ; $Y = 0$ mm ; $F_G = 31,94$ kJ.cm <sup>-2</sup> .....	146
Figure 4-39 : Variations d'intensité de la raie 696,5 nm d'Ar I pour différents délais et les rapports d'intensité entre l'intensité lumineuse avec miroir et celle sans miroir ; pression d'argon = 0,4 bar ; $X = 0$ mm ; $Y = 0$ mm ; $F_G = 67,48$ kJ.cm <sup>-2</sup> .....	147
Figure 4-40 : Variations d'intensité de la raie 480,6 nm d'Ar II pour différents délais et les rapports d'intensité entre l'intensité lumineuse avec miroir et celle sans miroir ; pression d'argon = 0,4 bar ; $X = 0$ mm ; $Y = 0$ mm ; $F_G = 67,48$ kJ.cm <sup>-2</sup> .....	148
Figure 4-41 : Étude du plasma d'argon par diffusion Thomson ; $t_{gd} = 1$ $\mu$ s (pour a) et b)) ; Réseau de 1200 traits.mm <sup>-1</sup> (pour b) et c)) ; $F_G = 67,48$ kJ.cm <sup>-2</sup> ; $F_S = 0,28$ kJ.cm <sup>-2</sup> ; Pression d'argon = 0,4 bar.....	149
Figure 4-42 : Évolution temporelle des paramètres électroniques déterminés par diffusion Thomson ; $E_G$ adaptée à la stabilisation spatiale du plasma ; $F_S = 0,28$ kJ.cm <sup>-2</sup> .....	151
Figure 4-43 : Paramètres Stark de la raie 696,5 nm d'Ar I en fonction de la densité électronique ; $E_G$ adaptée à la stabilisation spatiale du plasma ; $F_S = 0,28$ kJ.cm <sup>-2</sup> .....	151
Figure 4-44 : Paramètres Stark de la raie 480,6 nm d'Ar II en fonction de la densité électronique ; $E_G$ adaptée à la stabilisation spatiale du plasma ; $F_S = 0,28$ kJ.cm <sup>-2</sup> .....	152
Figure 4-45 : Raie 696,5 nm d'Ar I : Paramètres Stark normalisés à $N_e^{DT}$ en fonction de la température électronique ; $E_G$ adaptée à la stabilisation spatiale du plasma ; $F_S = 0,28$ kJ.cm <sup>-2</sup> .....	153
Figure 4-46 : Raie 480,6 nm d'Ar II : Paramètres Stark normalisés à $N_e^{DT}$ en fonction de la température électronique ; $E_G$ adaptée à la stabilisation spatiale du plasma ; $F_S = 0,28$ kJ.cm <sup>-2</sup> .....	154
Figure 4-47 : Évolution temporelle des temps de relaxation $\tau_{rel}$ au centre du plasma.....	156
Figure 4-48 : Évolution des taux de variations temporelles des paramètres du plasma par rapport aux temps de relaxation au centre du plasma pour les raies 106,66 nm d'Ar I et 91,97 nm d'Ar II ; $F_G = 44,9$ kJ.cm <sup>-2</sup> ; $F_S = 0,28$ kJ.cm <sup>-2</sup> .....	156
Figure 4-49 : Évolution spatio-temporelle de la plume de plasma de cuivre ; $F_G = 72$ kJ.cm <sup>-2</sup> ; $t_{exp} = 3$ % du délai.....	159
Figure 4-50 : Vitesse d'expansion du plasma de cuivre dans les axes X et Y en fonction du temps ; $F_G = 72$ kJ.cm <sup>-2</sup> .....	159
Figure 4-51 : Focalisation d'un faisceau gaussien.....	160
Figure 4-52 : PIL sur cible de cuivre : Évolutions comparées de la plume plasma et des cratères sur la cible en fonction du nombre d'impulsions laser ; $t_{gd} = 1$ $\mu$ s ; $t_{exp} = 30$ ns (3 % du délai $t_{gd}$ ).....	161
Figure 4-53 : Aspect morphologique des cratères en surface de la cible de cuivre.....	162
Figure 4-54 : Spectres d'émission (intégrés en Y et Z) de quelques raies de Cu I et de Cu II en fonction du temps ; $X = 0$ mm ; Réseau de 1200 traits.mm <sup>-1</sup> ; $F_{G100} = 0,085$ kJ.cm <sup>-2</sup> .....	163
Figure 4-55 : Graphes de Boltzmann de Cu I ; délai = 1500 ns ; $X = 0$ mm ; $r = 0$ mm ; $F_{G100} = 0,085$ kJ.cm <sup>-2</sup> .....	164
Figure 4-56 : Variations spatio-temporelles de la température d'excitation $T_{ex}^{CuI}$ de Cu I ; $X = 0$ mm ; $Z = 0$ mm ; $F_{G100} = 0,085$ kJ.cm <sup>-2</sup> .....	165
Figure 4-57 : Variations spatio-temporelles de la densité électronique $N_e^{CuI}$ issue de la raie 510,5 nm de Cu I ; $X = 0$ mm ; $Z = 0$ mm ; $F_{G100} = 0,085$ kJ.cm <sup>-2</sup> .....	166
Figure 4-58 : Spectroscopie du plasma de cuivre ; $t_{gd} = 1800$ ns ; $F_{G100} = 0,085$ kJ.cm <sup>-2</sup> ; $F_S = 0,28$ kJ.cm <sup>-2</sup> ; Réseau de 1200 traits.mm <sup>-1</sup> .....	168
Figure 4-59 : Variations spatiales des spectres de diffusion Thomson ; $X = 0$ mm ; $t_{gd} = 1800$ ns ; $F_{G100} = 0,085$ kJ.cm <sup>-2</sup> ; $F_S = 0,28$ kJ.cm <sup>-2</sup> ; Réseau de 1200 traits.mm <sup>-1</sup> .....	168
Figure 4-60 : Diagnostic du plasma d'ablation de Cuivre par DT ; $t_{gd} = 1800$ ns ; $X = 0$ mm ; $F_{G100} = 0,085$ kJ.cm <sup>-2</sup> ; $F_S = 0,28$ kJ.cm <sup>-2</sup> ; Réseau de 1200 traits.mm <sup>-1</sup> .....	169
Figure 4-61 : Variations spatio-temporelles des températures du plasma de cuivre déterminées par SOE et par DT....	170
Figure 4-62 : Variations spatio-temporelles des densités électroniques du plasma de cuivre déterminées par SOE et par DT.....	171

Figure 4-63 : Évolution temporelle du temps de relaxation $\tau_{rel}$ au centre du plasma pour la raie 327,39 nm de Cu I ; $F_{G100} = 0,085 \text{ kJ.cm}^{-2}$ ; $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .....	172
Figure 4-64 : Évolution des taux de variations temporelles des paramètres du plasma par rapport aux temps de relaxation au centre du plasma pour la raie 327,39 nm de Cu I ; $F_{G100} = 0,085 \text{ kJ.cm}^{-2}$ ; $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ ...	172
Figure 5-1 : Évolution du temps de relaxation de plusieurs espèces chimiques en fonction de la température. ....	180
Figure 5-2 : Variations temporelles de la densité électronique du plasma de CO <sub>2</sub> mesurée par diffusion Thomson ; $N_e^{DT}$ en [ $10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ] et $t$ en [ $\mu\text{s}$ ] ; $X = 0 \text{ mm}$ ; $r = 0 \text{ mm}$ ; $F_G = 4,05 \text{ kJ.cm}^{-2}$ ; $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .....	181
Figure 6-1 : Évolution temporelle de la densité électronique, de la température électronique et de la température de l'hélium au centre du plasma.....	183
Figure 6-2 : Dispositif expérimental du STR.....	184
Figure 6-3 : Angles de dispersion des réseaux et zone de focalisation sur le masque ; la direction X est l'axe dispersion de la lumière focalisée et le masque est positionné dans le plan de l'axe X. ....	185
Figure 6-4 : Premiers spectres de diffusion obtenus par DT avec le STR ; $t_{gd} = 200 \text{ ns}$ ; $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ ; $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ . .....	186
Figure 6-5 : Schéma temporel de la procédure d'analyse à deux étapes proposée par [208]......	188
Figure 8-1 : Photo du générateur de décharges électriques. ....	203
Figure 9-1 : Logiciel d'inversion d'Abel et de déconvolution des spectres d'émission.....	206
Figure 10-1 : Logiciel d'ajustement des spectres de diffusion Thomson. ....	208

## **Liste des tableaux**

Tableau 1 : Paramètre de diffusion $\alpha$ évalué dans quelques plasmas typiques. ....	47
Tableau 2 : MIE $E_{10}$ de différentes poudres métalliques. ....	56
Tableau 3 : Composition locale de la cathode par ADE. ....	66
Tableau 4 : Caractéristiques des réseaux de diffraction.....	67
Tableau 5 : Données spectroscopiques de W I utilisées ; Erreur sur $A_{ul} < 3\%$ (A) ; Erreur sur $A_{ul} < 10\%$ (B).....	77
Tableau 6 : Températures en [K] mesurées dans l'étincelle par spectroscopie moléculaire et par graphe de Boltzmann, extrait de [62]......	89
Tableau 7 : Seuils de claquage en irradiance de quelques gaz, adapté de [121]. ....	104
Tableau 8 : Seuils d'ablation en irradiance de quelques cibles solides, adapté de [121]. ....	105
Tableau 9 : Données spectroscopiques des raies d'Ar I utilisées ; Erreur sur $A_{ul} \leq 5\%$ (A) ; Erreur sur $A_{ul} \leq 10\%$ (B) ; Erreur sur $A_{ul} \leq 25\%$ (C). ....	129
Tableau 10 : Données spectroscopiques des raies d'Ar II utilisées ; Erreur sur $A_{ul} \leq 5\%$ (A) ; Erreur sur $A_{ul} \leq 10\%$ (B) ; Erreur sur $A_{ul} \leq 25\%$ (C). ....	129
Tableau 11 : Paramètres Stark de la raie 696,5 nm d'Ar I pour différentes densités et températures électroniques ; Erreurs sur $\Delta\lambda_s$ et $\Delta d_s \leq 5\%$ (A) ; Erreurs sur $\Delta\lambda_s$ et $\Delta d_s \leq 10\%$ (B) ; Erreurs sur $\Delta\lambda_s$ et $\Delta d_s \leq 25\%$ (C).....	152
Tableau 12 : Paramètres Stark de la raie 480,6 nm d'Ar II pour différentes densités et températures électroniques ; Erreurs sur $\Delta\lambda_s$ et $\Delta d_s \leq 5\%$ (A) ; Erreurs sur $\Delta\lambda_s$ et $\Delta d_s \leq 10\%$ (B) ; Erreurs sur $\Delta\lambda_s$ et $\Delta d_s \leq 25\%$ (C).....	153
Tableau 13 : Paramètres d'ablation en fonction du nombre de tirs du laser ; $E_G = 16$ mJ. ....	162
Tableau 14 : Données spectroscopiques des raies de Cu I utilisées ; Erreur sur $A_{ul} \leq 5\%$ (A) ; Erreur sur $A_{ul} \leq 10\%$ (B) ; Erreur sur $A_{ul} \leq 25\%$ (C). ....	164
Tableau 15 : Espèces chimiques et données spectroscopiques des transitions radiatives. ....	180



## Liste des symboles

$\omega_{pe}$ : fréquence plasma électronique	[rad.s <sup>-1</sup> ]
$\omega_{pi}$ : fréquence plasma ionique	[rad.s <sup>-1</sup> ]
$\omega_c$ : fréquence de collision	[Hz]
$\omega_{i0}$ : fréquence de collision ion-neutre	[Hz]
$\omega_{e0}$ : fréquence de collision électron-neutre	[Hz]
$\lambda_D$ : longueur de Debye	[m]
$\nu$ : fréquence du rayonnement	[Hz]
$\lambda_L$ : longueur d'onde du rayonnement laser incident	[m]
$\omega_L$ : fréquence du rayonnement laser incident	[rad.s <sup>-1</sup> ]
$\omega_s$ : fréquence du rayonnement diffusé	[rad.s <sup>-1</sup> ]
$\theta$ : angle d'observation	[rad]
$\Omega$ : angle solide de diffusion	[sr]
$\sigma_s$ : section efficace de diffusion	[m <sup>-2</sup> ]
$\sigma_T$ : section efficace totale de diffusion	[m <sup>-2</sup> ]
$\tau_{arc}$ : durée de la décharge	[s]
$d_{elec}$ : distance entre les électrodes	[m]
$E_{arc}$ : énergie de décharge	[J]
$E_{10}$ : énergie de décharge avec une probabilité d'allumage de 10 %	[J]
$I_{arc}$ : intensité de décharge	[A]
$U_{arc}$ : tension de décharge	[V]
$P_{arc}$ : puissance de décharge	[W]
$r_e$ : rayon classique de l'électron	[m]
$Z$ : charge de l'ion	
$\mathbf{E}_i$ : champ électrique vectoriel du rayonnement laser incident	[V.m <sup>-1</sup> ]
$\mathbf{E}_{i0}$ : amplitude vectorielle du champ électrique du rayonnement laser incident	[V.m <sup>-1</sup> ]
$\mathbf{E}_s$ : champ électrique vectoriel du rayonnement diffusé	[V.m <sup>-1</sup> ]
$\mathbf{k}_L$ : vecteur d'onde du rayonnement laser incident	[rad.m <sup>-1</sup> ]
$\mathbf{k}_s$ : vecteur d'onde du rayonnement diffusé	[rad.m <sup>-1</sup> ]

## **Liste des symboles (suite)**

$k$ : vecteur d'onde différentiel du rayonnement diffusé	[rad.m <sup>-1</sup> ]
$T_e$ : température électronique	[K]
$T_i$ : température ionique	[K]
$T_{ion}$ : température d'ionisation	[K]
$T_{ex}$ : température d'excitation	[K]
$T_r$ : température de rayonnement de Planck	[K]
$N_e$ : densité électronique	[m <sup>-3</sup> ]
$N_i$ : densité ionique	[m <sup>-3</sup> ]
$N_0$ : densité des neutres	[m <sup>-3</sup> ]
$G_0$ : gain de la caméra ICCD	
$N_{acc}$ : nombre d'accumulations sur la matrice ICCD	
$t_{exp}$ : temps d'ouverture de la caméra (« gate width »)	[s]
$t_{gd}$ : délai d'enregistrement après le déclenchement (« gate delay »)	[s]
$e_{spect}$ : largeur de la fente d'entrée du spectromètre	[μm]
$d_{elec}$ : distance inter-électrode (cas de la décharge d'étincelle)	[m]
$t_{arc}$ : durée de la décharge d'étincelle	[s]
$E_G$ : énergie du laser générateur	[J]
$E_S$ : énergie du laser sonde	[J]
$F_G$ : fluence du laser générateur au point de focalisation	[J.cm <sup>-2</sup> ]
$F_{GN}$ : fluence du laser générateur au point de focalisation au bout de $N$ tirs	[J.cm <sup>-2</sup> ]
$F_S$ : fluence du laser sonde au point de mesure	[J.cm <sup>-2</sup> ]
$\omega_0$ : « waist » ou rayon du faisceau laser au point de focalisation	[μm]
$\omega_{0G}$ : « waist » du laser générateur	[μm]
$\omega_{0S}$ : « waist » du laser sonde	[μm]

## **Liste des constantes**

$\epsilon_0$  : permittivité du vide

$$\epsilon_0 = 8,85 \times 10^{-12} \text{ F.m}^{-1}$$

$\sigma$  : constante de Stefan-Boltzmann

$$\sigma = 5,67 \times 10^{-8} \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-4}$$

$c$  : vitesse de la lumière dans le vide

$$c = 2,99 \times 10^8 \text{ m.s}^{-1}$$

$h$  : constante de Planck

$$h = 6,62 \times 10^{-34} \text{ J.s}$$

$k_B$  : constante de Boltzmann

$$k_B = 1,38 \times 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$$

$m_e$  : masse électronique

$$m_e = 9,11 \times 10^{-31} \text{ kg}$$

$q_e$  : charge électronique

$$q_e = -1,60 \times 10^{-19} \text{ C}$$

$m_H$  : masse de l'hydrogène

$$m_H = 1,67 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

## **Liste des sigles**

DR : Diffusion Rayleigh

DT : Diffusion Thomson

DTE : Diffusion Thomson Electronique

DTI : Diffusion Thomson Ionique

EMI : Énergie Minimale d'Inflammation (EMIs au pluriel)

ETL : Équilibre Thermodynamique Local

ETC : Équilibre Thermodynamique Complet

FWHM : Full Width at Half Maximum

LIBS : Laser-Induced Breakdown Spectroscopy

PIL : Plasma Induit par Laser (PILs au pluriel)

SOE : Spectroscopie Optique d'Émission

STR : Spectromètre à Trois Réseaux

MIE : Minimum Ignition Energy

# **Introduction générale et Contexte de l'étude**

## Introduction générale

Le plasma est le quatrième état de la matière après les états solide, liquide et gazeux, suivant l'augmentation de l'énergie du milieu considéré. Désigné ainsi en 1928 par I. Langmuir, le plasma est un milieu constitué de particules énergétiques chargées ou neutres pouvant échanger de l'énergie par collisions électroniques accompagnées de processus d'émission et d'absorption de photons. Un plasma est un milieu macroscopiquement électriquement neutre avec une densité d'espèces chargées positivement approximativement égale à la densité d'espèces chargées négativement. On distingue principalement deux types de plasmas : les plasmas « froids », pour lesquels la température des particules ne dépasse pas quelques dizaines de milliers de degrés, et les plasmas « chauds » avec des températures de particules pouvant atteindre des millions de degrés, comme au cœur des étoiles ou dans les plasmas de fusion. Les plasmas froids, constitués principalement de plasmas de décharges, peuvent être subdivisés en deux catégories : les plasmas « hors équilibre » et les plasmas « thermiques ». L'émission de lumière, qui est l'une des principales propriétés des plasmas, permet de visualiser et de caractériser des milieux plasmagènes même éloignés tels que le soleil, les autres étoiles ou la matière interstellaire. Les plasmas sont en général caractérisés par leurs pressions, leurs températures et leurs densités électroniques (*Figure 0-1*). Même si les plasmas représentent 99 % de la matière connue de l'univers, la Terre est un milieu particulièrement protégé et les plasmas naturels terrestres sont relativement peu nombreux : ils se limitent quasiment aux éclairs, aux aurores polaires ou aux feux de St-Elme.

Cependant, le développement et la fabrication de sources de plasmas artificiels permet d'exploiter leurs propriétés de conduction électrique et thermique, de réactivité chimique ou de radiation. Le nombre de champs d'application des plasmas artificiels ne cesse d'augmenter et ils concernent principalement quatre domaines :

- *L'énergie* avec les réacteurs à fusion thermonucléaire (par exemple le projet ITER<sup>1</sup>), la propulsion aéronautique et spatiale, les arcs transitoires (impact de la foudre, arcs de coupure ou de défaut), etc.
- *Le traitement des matériaux* avec le traitement et/ou la fonctionnalisation de surface, la stabilisation ou le retraitement des déchets par plasma, les sources enthalpiques (soudage, découpe, projection plasma, hauts fourneaux, etc.).
- *L'environnement* avec la décontamination/stérilisation, le traitement des effluents, etc.
- *Les sources d'éclairage*, essentiellement scientifiques depuis le développement des dispositifs à LED.

Ces plasmas artificiels sont générés en ionisant des particules de matière par un apport d'énergie électrique, lumineuse ou nucléaire. Les études théoriques, fondamentales et appliquées sur les plasmas, depuis le 19<sup>e</sup> siècle jusqu'à aujourd'hui, ont

---

<sup>1</sup> ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor) est un projet de réacteur de recherche civil à fusion nucléaire à Cadarache (France) regroupant 35 pays.

contribué à une meilleure connaissance et une meilleure maîtrise de ces milieux ionisés même si de nombreuses zones d'ombre persistent encore.

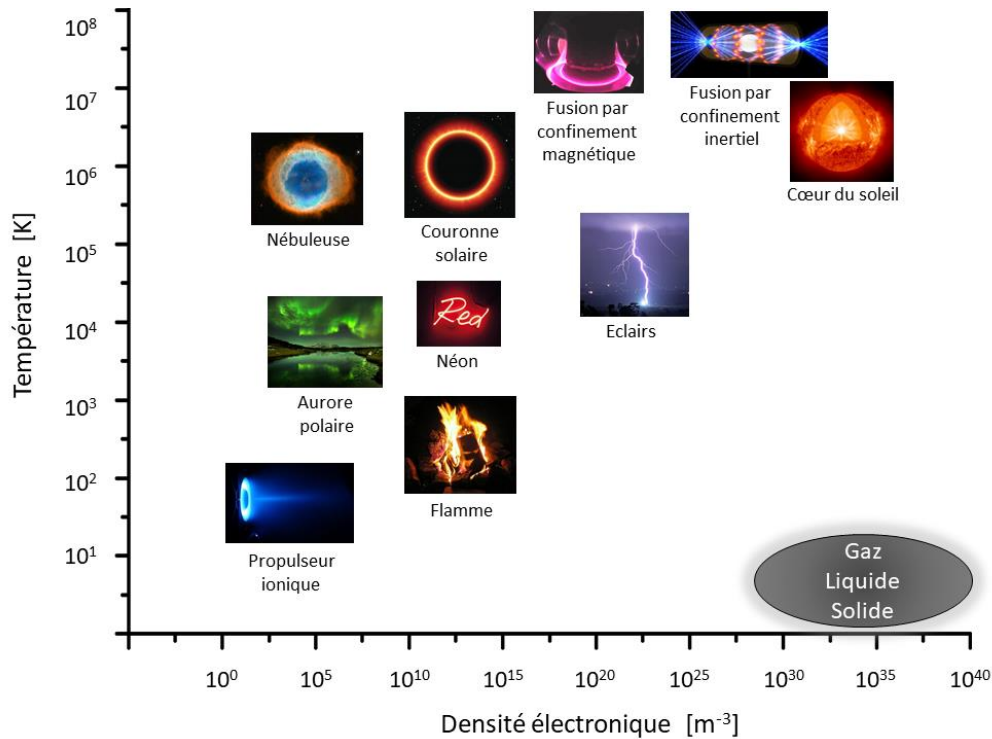


Figure 0-1 : Diagramme de phase des plasmas : température en fonction de la densité électronique.

## Contexte de l'étude

Cette thèse s'inscrit dans le cadre de l'étude des milieux plasmagènes transitoires générés par décharge électrique pointe-pointe et par claquage laser, utilisés pour les applications d'allumage (poudres, nuages de poussières, mélanges combustibles) ou à des fins d'analyses (étincelage, spectroscopie de plasma induit par laser (LIBS)). Une meilleure connaissance de ces milieux, difficiles à appréhender en raison de leur caractère transitoire et des gradients importants qui les caractérisent, est en effet nécessaire pour comprendre ensuite l'évolution vers les phases ultérieures du procédé (passage à l'explosion/combustion en allumage), développer des méthodes de quantification adaptées (LIBS), voire encore fournir des données d'entrée réalistes pour les modélisations. Deux techniques complémentaires de caractérisations spectroscopiques ont été mises en œuvre : la Spectroscopie Optique d'Émission (SOE) et la Diffusion Thomson (DT). La combinaison de ces deux techniques de caractérisations doit permettre, entre autre, d'appréhender les conditions d'existence de l'Équilibre Thermodynamique Local (ETL) dans les types de plasmas étudiés. Cette hypothèse

## Introduction générale et Contexte de l'étude

d'existence de l'ETL dans le plasma est couramment admise, mais pas toujours vérifiée : elle permet de déterminer simplement les paramètres essentiels des plasmas tels que la densité électronique, la température d'excitation, la température d'ionisation et la composition du plasma. L'utilisation de méthodes croisées de SOE (fondées sur des hypothèses complémentaires validant l'ETL) et de la DT (qui permet de déterminer localement, uniquement en supposant une distribution maxwellienne des vitesses translationnelles des particules, la densité électronique, la température électronique et le rapport de températures électronique et ionique dans le milieu), doit permettre de valider les conditions d'ETL dans les plasmas étudiés.

Les deux premières parties de ce manuscrit présenteront, d'une part des généralités sur les plasmas, et notamment les processus mis en jeu et la notion d'équilibre thermodynamique, et d'autre part les méthodes mises en œuvre pour la caractérisation des plasmas : la SOE et la DT.

La troisième partie de ce manuscrit sera consacrée à l'étude d'une décharge électrique sous le régime d'arc par SOE pour fournir des données réalistes pouvant être utilisées comme données d'entrée pour la simulation d'allumage de matières combustibles. Cette étude s'est faite sous hypothèse d'ETL en utilisant la loi d'équilibre de Boltzmann pour déterminer la température d'excitation des espèces du plasma et la loi d'équilibre d'ionisation de Saha pour déterminer la densité électronique. Compte tenu de la composition du plasma, essentiellement constitué de tungstène arraché des électrodes, nous exploiterons le spectre de W I pour le diagnostic dans trois zones distinctes de la colonne d'arc (proche de l'anode, la colonne et proche de la cathode), et montrerons que seul le plasma de la colonne vérifie le critère de McWhirter, indispensable mais pas suffisant pour garantir la validité de l'ETL.

La quatrième partie de ce manuscrit est consacrée à l'étude des Plasmas Induits par Laser (PILs) dans l'argon gazeux (plasma de claquage) et sur une cible solide cuivre pur (plasma d'ablation). L'étude de ces PILs sera faite d'une part par SOE et d'autre part par DT qui est une technique spectroscopique indépendante de l'ETL. L'objectif final est de comparer les paramètres thermodynamiques des plasmas mesurées par différentes méthodes et de les corrélérer avec les critères d'existence de l'ETL. Nous montrerons également toute l'efficacité de l'emploi simultanées de la DT pour diagnostiquer le plasma, et de la SOE pour déterminer les paramètres Stark de raies spectrales, afin de proposer des valeurs précises de la dépendance de l'élargissement des raies en fonction de  $N_e$  et  $T_e$ , données indispensables pour le diagnostic des plasmas d'intérêts scientifiques ou technologiques.

Enfin, les principaux résultats du travail de thèse sont rappelés dans la conclusion générale, avant de présenter quelques perspectives concernant l'exploitation de la diffusion Thomson ionique, pouvant servir à déterminer notamment la température cinétique des ions. La connaissance précise de cette température permettrait d'évaluer les écarts de températures cinétiques entre les espèces lourdes (ions) et les espèces légères (électrons), et donc de mieux quantifier les écarts à l'ETL.

# **Partie 1 : Généralités sur les plasmas**



# 1 Généralités sur les plasmas

## 1.1 Les grandeurs caractéristiques d'un plasma

Les températures des particules et la densité électronique constituent des données essentielles dans un plasma permettant de décrire son évolution au sens thermodynamique. Cependant, des paramètres secondaires tels que son taux d'ionisation permettent de comprendre le comportement global du plasma. En effet, contrairement aux solides, liquides et gaz, la présence en grande quantité de particules chargées électriquement dans le plasma donne lieu à des interactions de longues portées pouvant atteindre quelques millimètres. Ces interactions entre particules chargées mettent en jeu des forces coulombiennes qui décroissent en  $1/r^2$  et entraînent un comportement du plasma dit « collectif ». Cependant, des interactions de courtes portées peuvent avoir lieu entre les particules chargées et les neutres dont une polarisation peut apparaître par distorsion de leurs nuages électroniques à l'approche d'une particule chargée. La nature des interactions est donc fortement liée au degré d'ionisation du plasma  $\alpha_0$  qui est le rapport entre le nombre de particules ionisées  $\sum N_i$  et le nombre total de particules  $N_0 + \sum N_i$ . Par exemple, pour un plasma une fois ionisé dont la densité électronique est égale à la densité des particules ionisées,  $\alpha_0$  s'écrit comme suit :

$$\alpha_0 = \frac{N_e}{N_0 + N_e} \quad 1.1$$

$N_e$  : densité électronique [m<sup>-3</sup>]

$N_0$  : densité des neutres [m<sup>-3</sup>]

Le degré d'ionisation est un paramètre permettant aussi de distinguer les plasmas froids faiblement ionisés ( $\alpha_0 \ll 1$ ) des plasmas chauds fortement ionisés ( $\alpha_0 \approx 1$ ).

Une distance caractéristique est la longueur de Debye  $\lambda_D$  qui représente la distance à partir de laquelle le champ électrique d'une charge est « ressenti » au sens d'une interaction coulombienne par l'autre. Au-delà de cette distance, le comportement collectif de toutes les charges produit un écrantage de tout champ électrostatique avoisinant.

$$\lambda_D = \left( \frac{\epsilon_0 k_B T}{\sum_j N_j q_j^2} \right)^{\frac{1}{2}} \quad [\text{m}] \quad 1.2$$

$\epsilon_0$  : permittivité du vide [F.m<sup>-1</sup>]

$k_B$  : constante de Boltzmann [J.K<sup>-1</sup>]

$T$  : température dans le milieu en équilibre thermodynamique [K]

$N_j$  : densité de la particule chargée ( $j$ ) [m<sup>-3</sup>]

$q_j$  : charge de la particule chargée ( $j$ ) [C]

## Partie 1 : Généralités sur les plasmas

La longueur de Debye est de l'ordre de quelques micromètres pour un plasma de décharge dans un gaz mais elle dépasse en général quelques mètres dans un plasma d'aurore polaire. Au sens physique du terme, un plasma désigne en l'occurrence un milieu contenant des particules chargées, dont la taille ( $L$ ) est largement supérieure à la longueur de Debye ( $L \gg \lambda_D$ ) mais également possédant une grande quantité de particules chargées dans une sphère dite de Debye dont le rayon est égal à la longueur de Debye ( $N_j \lambda_D^3 \gg 1$ ). Ainsi, les gaz des couches basses de l'atmosphère, à une altitude d'environ 5 km par exemple, ne sont pas suffisamment énergétiques pour constituer un plasma. En effet, leur faible densité électronique ( $\approx 10^3 \text{ cm}^{-3}$ ), issue d'ionisations par le rayonnement cosmique, la radioactivité naturelle et les phénomènes d'électrisation atmosphérique, n'induit pas un comportement collectif des particules chargées.

Même si le plasma est globalement neutre, sa perturbation par un phénomène externe entraîne un déséquilibre des forces électriques d'attraction et de répulsion coulombiennes. Le retour à l'équilibre se fait donc par un déplacement des charges et, puisque les électrons et les ions possèdent des masses très différentes, il en résulte un déphasage et une oscillation du déplacement des charges à une certaine fréquence donnée, appelée « fréquence plasma ». Pour les électrons, il s'agit de la fréquence plasma électronique  $\omega_{pe}$  s'exprimant comme :

$$\omega_{pe} = \left( \frac{N_e q_e^2}{\epsilon_0 m_e} \right)^{\frac{1}{2}} \quad [\text{rad. s}^{-1}] \quad 1.3$$

$N_e$  : densité électronique [m<sup>-3</sup>]

$q_e$  : charge électronique [C]

$m_e$  : masse électronique [kg]

La fréquence plasma électronique, qui traduit la fréquence du retour à l'électroneutralité après une perturbation, est aussi un paramètre qui renseigne sur la stabilité de la neutralité de charge globale du plasma.

Il faut noter que, fondamentalement, deux autres conditions sont nécessaires pour obtenir un état plasma :

- Les collisions avec les neutres ne doivent pas empêcher le retour à l'électroneutralité du milieu ; en d'autres termes, la fréquence de collision électron-neutre  $\omega_{e0}$ , doit être très inférieure à la fréquence plasma électronique  $\omega_{pe}$  ( $\omega_{e0} \ll \omega_{pe}$ ).
- Le comportement collectif du milieu doit y être assuré par les collisions à longues portées, et donc la fréquence de collision dans le plasma  $\omega_c$ , doit être très grande par rapport à la fréquence de collision ion-neutre  $\omega_{i0}$  ( $\omega \ll \omega_{i0}$ ).

## 1.2 Les processus collisionnels et radiatifs

L'existence de fortes interactions entre les particules du plasma joue un rôle important dans l'établissement de l'équilibre thermodynamique, qu'il soit complet ou local. Ces interactions, qui sont exacerbées par de fortes densités d'espèces excitées et chargées électriquement, peuvent être divisées en deux catégories : les processus collisionnels et les processus radiatifs.

### 1.2.1 Les processus collisionnels

Les processus collisionnels correspondent à l'interaction entre deux particules de matière  $A$  et  $B$  (atome, ion, électron), de masses respectives  $m_A$  et  $m_B$ , qui peuvent entraîner des échanges d'énergie cinétique.

#### 1.2.1.1 Collisions élastiques

Il s'agit d'une collision avec conservation de la masse, de l'impulsion et surtout de l'énergie cinétique totale. Il faut remarquer que ce type d'interaction ne nécessite aucun seuil énergétique, ce qui fait qu'il est très fréquent dans un plasma. Ce type de collision se traduit par l'équation suivante [1] :

$$A \left( \frac{1}{2} m_A v_A^2 \right) + B \left( \frac{1}{2} m_B v_B^2 \right) \rightleftharpoons A \left( \frac{1}{2} m_A v_A'^2 \right) + B \left( \frac{1}{2} m_B v_B'^2 \right) \quad 1.4$$

Les vitesses respectives  $v_A$  et  $v_B$  avant collision peuvent être différentes des vitesses respectives  $v_A'$  et  $v_B'$  après collision. Lorsque la cible  $B$  est immobile ( $v_B = 0$ ), le coefficient de transfert d'énergie cinétique moyen  $\overline{K_{cin}}$  ne dépend que des masses des particules :

$$\overline{K_{cin}} = 4 \frac{m_A \times m_B}{(m_A + m_B)^2} \quad 1.5$$

Par conséquent, les collisions élastiques entre les électrons et les particules dites « lourdes » (molécule, atome, ion) jouent un rôle peu important dans l'équilibre thermodynamique.

#### 1.2.1.2 Collisions inélastiques

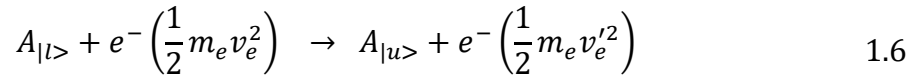
Lors d'une collision inélastique, il y a modification de l'énergie cinétique totale des deux particules concernées : une fraction de cette énergie cinétique est transférée à l'état

interne d'une partie ou de l'ensemble des particules en interaction, qui peuvent alors s'exciter, s'ioniser, se recombiner, etc. Etant donné que les niveaux d'énergies internes sont discrétisés, une collision inélastique nécessite un seuil d'énergie pour se produire et par conséquent elle est moins fréquente qu'une collision élastique.

Du fait de leurs vitesses cinétiques relativement élevées, les électrons libres jouent un rôle important dans les collisions inélastiques et dans l'établissement de l'équilibre thermodynamique via les réactions d'excitation et d'ionisation. Considérons une collision inélastique entre un électron ( $e^-$ ) et une particule ( $A$ ) atomique ou ionique, les phénomènes suivants peuvent alors se produire :

- Excitation et désexcitation par collision électronique

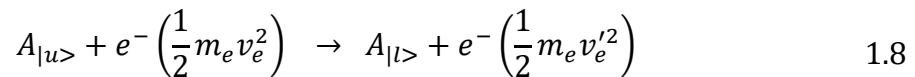
La collision avec un électron énergétique fait passer la particule ( $A$ ) de niveau d'excitation  $|l\rangle$  (d'énergie  $E_l$ ) à un autre niveau supérieur  $|u\rangle$  (d'énergie  $E_u$ ) :



On parle alors « d'excitation par collision électronique » : la vitesse de l'électron diminue de  $v_e$  à  $v_e'$  et la variation positive d'énergie interne de la particule impactée est égale à :

$$(E_u - E_l) = \frac{1}{2} m_e (v_e^2 - v_e'^2) \quad 1.7$$

Le cas inverse de la « désexcitation par choc électronique » du niveau supérieur  $|u\rangle$  vers le niveau inférieur  $|l\rangle$ , s'écrit :

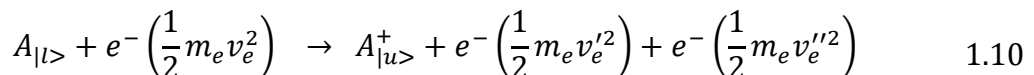


L'électron gagne de l'énergie au cours du choc : la collision est dite super élastique.

$$\frac{1}{2} m_e v_e'^2 = \frac{1}{2} m_e v_e^2 + (E_u - E_l) \quad 1.9$$

- Ionisation et recombinaison par collision électronique

Dans le cas où l'énergie transférée par l'électron à la particule ( $A$ ) est supérieure ou égale à l'énergie d'ionisation  $E_{l,\infty}$  d'un électron du niveau  $|l\rangle$  appartenant au nuage électronique de la particule, alors il y a « ionisation par collision électronique » :



$$\frac{1}{2} m_e v_e^2 \geq E_{l\infty} = (E_{A\infty} - E_l) \quad 1.11$$

où  $E_{A\infty}$  est l'énergie d'ionisation (ou énergie de liaison) de la particule (A).

Le processus inverse qui correspond à la capture d'un électron libre par l'ion ( $A^+$ ) formé est appelé « recombinaison à trois corps » :

$$A_{|u\rangle}^+ + e^- \left( \frac{1}{2} m_e v_e'^2 \right) + e^- \left( \frac{1}{2} m_e v_e''^2 \right) \rightarrow A_{|l\rangle} + e^- \left( \frac{1}{2} m_e v_e^2 \right) \quad 1.12$$

## 1.2.2 Les processus radiatifs

L'énergie cinétique ou l'énergie interne de liaison peut, dans certains cas de figure, se convertir en énergie lumineuse. Il s'agit alors des processus radiatifs dans la matière qui se traduisent par deux phénomènes inverses : l'absorption ou l'émission de photons par réaction avec les électrons, qu'ils soient libres ou liés à une particule lourde.

### 1.2.2.1 Les transitions libres-libres

Lorsqu'une particule chargée est décélérée par un champ électrique, celle-ci perd de l'énergie cinétique qui est convertie en rayonnement électromagnétique continu. C'est ce que l'on appelle le « rayonnement continu de freinage » ou « Bremsstrahlung ». Le phénomène inverse d'accélération de la particule chargée par absorption du rayonnement est communément appelé « Bremsstrahlung inverse ».

### 1.2.2.2 Les transitions libres-liés

Ce type de rayonnement provient de la capture d'un électron libre par un ion ( $A^+$ ) dans un état  $|u\rangle$  pour former un atome (A) excité dans à un autre état  $|p\rangle$  avec émission d'un photon d'énergie  $h\nu$ . Ce phénomène est appelé « recombinaison radiative » et son processus inverse, qui correspond à l'ionisation par absorption de photon, est appelé « photo-ionisation » :



$$h\nu = \frac{1}{2} m_e v_e^2 + E_u + (E_{A\infty} - E_p) \quad 1.14$$

### 1.2.2.3 Les transitions liés-liés

Il s'agit d'un changement d'état quantique de la particule excitée ( $A$ ) dont l'électron passe d'un niveau  $u$  à un niveau  $l$ . On distingue deux cas de figure :

- L'émission spontanée

L'« émission spontanée » est un processus radiatif de désexcitation de la particule d'un niveau énergétique  $|u\rangle$  vers un niveau inférieur  $|l\rangle$  par émission d'un photon de fréquence  $\nu_{ul}$  :

$$A_{|u\rangle} \rightleftharpoons A_{|l\rangle} + h\nu_{ul} \quad 1.15$$

$$h\nu_{ul} = E_u - E_l \quad 1.16$$

Le rayonnement par émission spontanée est non cohérent pouvant donc se traduire par des variations de phase, de polarisation et de direction de propagation.

La probabilité de transition par émission spontanée est donnée par le 1<sup>e</sup> coefficient d'Einstein ou coefficient d'Einstein d'émission spontanée  $A_{ul}$  [ $s^{-1}$ ] : c'est une caractéristique importante d'une transition donnée pour une particule donnée, et de nombreux travaux existent dans la littérature pour tenter de les déterminer (cf. par exemple les tabulations proposées par le NIST [2]).

Le processus inverse d'excitation de la particule d'un niveau énergétique  $|l\rangle$  vers un niveau supérieur  $|u\rangle$  par capture d'un photon de fréquence  $\nu_{ul}$ , est l'« absorption ». La probabilité d'absorption de rayonnement est donnée par le 2<sup>e</sup> coefficient d'Einstein ou « coefficient d'absorption »  $B_{lu}$  [ $m^3 \cdot J^{-1} \cdot s^{-2}$ ].

- L'émission stimulée ou induite

L'absorption d'un photon par la particule excitée ( $A$ ) provoque une désexcitation radiative par émission de deux photons identiques :

$$A_{|u\rangle} + h\nu_{ul} \rightarrow A_{|l\rangle} + 2 h\nu_{ul} \quad 1.17$$

$$h\nu_{ul} = E_u - E_l \quad 1.18$$

Il s'agit ici d'une émission de photons cohérente avec le rayonnement incident : même phase, même polarisation, même sens de propagation. La probabilité de transition selon ce mode d'émission est donnée par le 3<sup>e</sup> coefficient d'Einstein ou coefficient d'Einstein d'émission stimulée  $B_{ul}$  [ $m^3 \cdot J^{-1} \cdot s^{-2}$ ], et on montre que :

$$B_{ul} = \frac{c^3}{8\pi h \nu_{ul}^3} A_{ul} \quad 1.19$$

$$g_u B_{ul} = g_l B_{lu} \quad 1.20$$

où  $g_u$  et  $g_l$  sont les poids statistiques (« dégénérescences ») respectifs des niveaux  $|u\rangle$  et  $|l\rangle$ . L'intensité de ce type d'émission est donc au même titre que l'absorption dépendant du champ de rayonnement incident  $u_\nu$  [ $\text{J}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{Hz}^{-1}$ ].

### 1.3 Équilibre Thermodynamique Complet (ETC)

Le cas le plus simple pour décrire un plasma consiste à considérer l'existence d'un équilibre thermodynamique complet. C'est un état physique idéal vers lequel tend tout plasma dense parfaitement isolé et conservant toutes ses formes d'énergie. C'est-à-dire que tous les processus microscopiques tels que l'excitation, l'ionisation et l'émission de rayonnement, sont parfaitement contrebalancés par leurs processus inverses qui sont respectivement, pour les exemples donnés, la recombinaison, la désexcitation et l'absorption : c'est le principe de micro-réversibilité. De plus, la température des électrons ( $T_e$ ), les températures cinétiques des neutres ( $T_0$ ) et des ions ( $T_i$ ), les températures d'excitation et d'ionisation des espèces ( $T_{ex}$ ,  $T_{ion}$ ) et la température du rayonnement de Planck ( $T_r$ ) correspondent à la même température  $T$  :

$$T_e = T_0 = T_i = T_{ex} = T_{ion} = T_r = T \quad [\text{K}] \quad 1.21$$

Dans le cas des particules polyatomiques, l'équilibre des températures est aussi valable pour la température vibrationnelle ( $T_{vib}$ ) et la température rotationnelle ( $T_{rot}$ ). À partir de l'hypothèse d'ETC, la physique statistique permet de décrire l'ensemble du système. Les processus collisionnels entre les ions et les électrons, en particulier les processus mettant en jeu les électrons, jouent un rôle prédominant dans ces plasmas. Ce sont les électrons qui assurent l'équilibre et l'égalité des températures d'excitation et d'ionisation avec la température cinétique. La composition et les grandeurs macroscopiques du plasma peuvent être calculées en utilisant les lois de distribution de la matière et les lois de distribution du rayonnement.

#### 1.3.1 Les lois de distribution de la matière

Un plasma est un système dynamique constitué d'un grand nombre de particules neutres et chargées. Par conséquent, en physique des plasmas, les outils et méthodes employés reposent essentiellement sur la mécanique, l'électrodynamique, la magnétodynamique et la physique statistique. En choisissant une approche statistique, la

description du plasma devient macroscopique et des fonctions de distribution sont introduites pour décrire le comportement global des particules.

### 1.3.1.1 Distribution de Maxwell

Dans un plasma en équilibre thermodynamique, homogène, isotrope et stationnaire, les vitesses de ses particules ( $j$ ) peuvent être définies par une fonction de distribution de Maxwell  $f_j(v)$  :

$$f_j(v) = 4\pi n_j \left( \frac{m_j}{2\pi k_B T_j} \right)^{3/2} v^2 \exp\left(-\frac{m_j v^2}{2k_B T_j}\right) \quad 1.22$$

$v$  : vitesse des particules ( $j$ ) [m.s<sup>-1</sup>]

$n_j$  : nombre de particules ( $j$ )

$m_j$  : masse d'une particule ( $j$ ) [kg]

$T_j$  : température cinétique des particules ( $j$ ) [K]

Cette fonction, dont un exemple est représenté sur la *Figure 1-1* dans le cas de particules d'argon, donne la répartition statistique des vitesses des particules à l'équilibre thermodynamique. La vitesse  $v_{0j}$  la plus probable de l'espèce ( $j$ ) selon la température est donnée par la relation :

$$v_{0j} = \sqrt{\frac{2k_B T_j}{m_j}} \quad 1.23$$

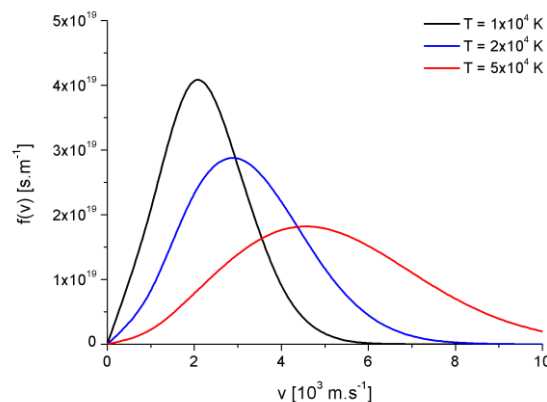


Figure 1-1 : Exemple de distribution maxwellienne des vitesses de particules d'argon en fonction de la température.



### 1.3.1.2 Loi de Boltzmann

Lorsqu'une particule acquiert de l'énergie, par collision inélastique par exemple, ses électrons ont tendance à peupler des niveaux d'énergie supérieurs. Pour un même niveau d'ionisation  $z$  donné, la densité  $N_{j,u}^{(z)}$  [ $\text{m}^{-3}$ ] de l'espèce ( $j$ ), dans le niveau excité  $|u\rangle$  d'énergie d'excitation  $E_{j,u}^{(z)}$  [J] est donnée par la loi de distribution de Boltzmann qui décrit l'équilibre d'excitation :

$$N_{j,u}^{(z)} = \frac{N_j^{(z)}}{U_j^{(z)}} g_{j,u}^{(z)} \times \exp\left(-\frac{E_{j,u}^{(z)}}{k_B T_{ex}}\right) \quad 1.24$$

$T_{ex}$  : température d'excitation [K]

$g_{j,u}^{(z)}$  : poids statistique du niveau  $|u\rangle$  de l'espèce ( $j$ ) dans l'état d'ionisation  $z$

$N_j^{(z)}$  : densité totale de l'espèce ( $j$ ) dans l'état d'ionisation  $z$  [ $\text{m}^{-3}$ ]

$U_j^{(z)}$  : fonction de partition de l'espèce ( $j$ ) dans l'état d'ionisation  $z$ , donnée par :

$$U_j^{(z)} = \sum_{u=0}^{\infty} g_{j,u}^{(z)} \times \exp\left(-\frac{E_{j,u}^{(z)}}{k_B T_{ex}}\right) \quad 1.25$$

### 1.3.1.3 Loi de Saha

Lorsque les processus d'ionisation qui sont principalement assurés par les électrons sont contrebalancés par les processus de recombinaison, les différents états d'ionisation successifs d'une espèce ( $j$ ) suivent la loi d'équilibre d'ionisation de Saha :

$$\frac{N_j^{(z+1)} N_e}{N_j^{(z)}} = 2 \frac{U_j^{(z+1)}}{U_j^{(z)}} \left(\frac{2\pi m_e k_B T_{ion}}{h^2}\right)^{3/2} \times \exp\left(-\frac{E_{j,\infty}^{(z)} - \Delta E_{j,\infty}^{(z)}}{k_B T_{ion}}\right) \quad 1.26$$

$h$  : constante de Planck [J.s]

$N_e$  : densité électronique [ $\text{m}^{-3}$ ]

$N_j^{(z)}$  : densité totale de l'espèce ( $j$ ) dans l'état d'ionisation  $z$  [ $\text{m}^{-3}$ ]

$U_j^{(z)}$  : fonction de partition de l'espèce ( $j$ ) dans l'état d'ionisation  $z$ .

$T_{ion}$  : température d'ionisation [K]

## Partie 1 : Généralités sur les plasmas

$E_{j,\infty}^{(z)}$  : énergie d'ionisation de l'espèce ( $j$ ) dans l'état d'ionisation  $z$  [J]

$\Delta E_{j,\infty}^{(z)}$  : Abaissement du Potentiel d'Ionisation (API) de l'espèce ( $j$ ) dans l'état d'ionisation  $z$  [J]

Cet API est induit par le champ électrique interne au plasma en raison de la présence des particules chargées. Pour des plasmas relativement denses ( $N_e \leq 10^{23} \text{ m}^{-3}$ ), l'API est donnée, dans la théorie de Griem [3], par la relation suivante :

$$\Delta E_{j,\infty}^{(z)} = \frac{(z+1) q_e^2}{4\pi \epsilon_0 \lambda_D} \quad [J] \quad 1.27$$

où est  $\lambda_D$  la longueur de Debye [m].

### 1.3.1.4 Loi de Dalton

En considérant le plasma comme un gaz parfait, la loi de Dalton, ou loi d'additivité des pressions partielles, permet de définir la pression totale  $P$  du plasma comme étant la somme de toutes les pressions partielles des particules ( $j$ ), de densité  $N_j [\text{m}^{-3}]$  et à la température  $T_j [\text{K}]$  :

$$P = \sum_j N_j k_B T_j \quad [\text{Pa}] \quad 1.28$$

### 1.3.1.5 Loi d'électro-neutralité

Le principe de l'électro-neutralité repose sur l'égalité des charges opposées puisque le plasma est globalement neutre :

$$N_e = \sum_j z N_j^{(z)} \quad 1.29$$

$N_e$  : densité électronique [m<sup>-3</sup>]

$N_j^{(z)}$  : densité totale de l'espèce ( $j$ ) dans l'état d'ionisation  $z$  [m<sup>-3</sup>]

### 1.3.2 Les lois du rayonnement

#### 1.3.2.1 Loi de Planck

À l'équilibre thermodynamique, le rayonnement spontané ou stimulé du plasma est observé à toutes les longueurs d'onde, spatialement isotrope et complètement absorbé. Le plasma dit « optiquement épais » est assimilé à un « corps noir » et l'équilibre entre l'émission et l'absorption de photons par la matière est décrite par la loi de Planck. Aussi, pour une longueur d'onde donnée, ce rayonnement ne dépend que de la température. La densité spectrale du rayonnement  $u_\nu$  [ $\text{J}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{Hz}^{-1}$ ] qui correspond à la quantité d'énergie rayonnée par unité de fréquence et par unité de volume dans une enceinte fermée à la température  $T_r$ , est donnée par la relation :

$$u_\nu(T_r) = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} \frac{1}{\exp\left(\frac{h\nu}{k_B T_r}\right) - 1} \quad 1.30$$

$c$  : vitesse de la lumière dans le vide [m.s<sup>-1</sup>]

$\nu$  : fréquence de rayonnement [Hz]

$T_r$  : température de rayonnement [K]

#### 1.3.2.2 Loi de déplacement de Wien

Par dérivation de la loi de Planck, on montre que l'énergie rayonnée dans tout le demi-espace par unité de surface et par unité de temps, d'une source à la température  $T_r$ , ou émittance  $M$  [ $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$ ], est maximale à une longueur d'onde particulière  $\lambda_{max}$  telle que :

$$\lambda_{max}(T_r) = \frac{2,8978 \times 10^{-3}}{T_r} \quad [\text{m}] \quad 1.31$$

#### 1.3.2.3 Loi de Stefan-Boltzmann

La loi de Stefan-Boltzmann s'obtient par intégration de la loi de Planck sur tout le spectre : elle relie l'émittance  $M$  [ $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$ ] à la température  $T_r$  de la source, par la relation :

$$M(T_r) = \sigma T_r^4 \quad 1.32$$

$\sigma$  : constante de Stefan-Boltzmann [ $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-4}$ ]

## 1.4 Équilibre Thermodynamique Local (ETL)

L'équilibre thermodynamique complet est un cas limite idéal rarement atteint et les plasmas artificiels en laboratoire ne sont jamais en ETC, ne serait-ce que parce qu'une partie du rayonnement s'en échappe. En effet, la taille des plasmas de laboratoire est trop restreinte pour permettre une réabsorption complète du rayonnement, comme c'est le cas dans le cœur des grandes étoiles par exemple. À cela s'ajoute l'existence de gradients de température et de densité d'espèces au sein du plasma provoquée par la diffusion de la chaleur de son centre vers l'extérieur. Cependant, en considérant des zones de volume suffisamment petit dans le plasma, certaines conditions nécessaires à l'équilibre thermodynamique peuvent exister localement. Les gradients de température et de densité d'espèces restent alors faibles et il y a micro-réversibilité pour les processus collisionnels entre particules. On définit alors la notion « d'équilibre thermodynamique local ». Dans ce cas, l'ensemble des lois de la physique statistique d'un ETC s'appliquent, à l'exception de la loi du rayonnement de Planck.

### 1.4.1 Critères d'ETL

L'ETL est une hypothèse faite pour faciliter le diagnostic des plasmas qui sont alors caractérisés par la seule température électronique  $T_e$ . Le plasma peut être facilement décrit par les relations issues des lois de distribution des particules et les lois du rayonnement précédemment citées. Cependant, cette hypothèse n'est pas satisfaite dans tous les cas, et il existe des critères d'existence de l'ETL en fonction de l'homogénéité et de la stationnarité du plasma.

#### 1.4.1.1 Cas d'un plasma homogène et stationnaire

Pour un plasma homogène et stationnaire, c'est-à-dire dont les paramètres varient peu spatialement et temporellement, plusieurs auteurs tels que Griem [4], McWhirter [5], Drawin [6] et Hey [7] ont formulé des critères d'existence de l'ETL reposant essentiellement sur une densité électronique minimale dans le plasma telle que le nombre de transitions atomiques par collisions inélastiques soit bien supérieur au nombre de transitions radiatives. Le critère de McWhirter [5] est probablement le plus utilisé, la densité électronique minimale pour garantir l'existence de l'ETL étant alors donnée par la relation :

$$N_e^* = 1,6 \times 10^{18} T_e^{1/2} (\Delta E_{ul})^3 \quad 1.33$$

$N_e^*$  : densité électronique limite [m<sup>-3</sup>]

$T_e$  : température électronique [K]

$\Delta E_{ul}$  : plus grand écart d'énergie entre niveaux de transition adjacents  $|u\rangle$  et  $|l\rangle$   
[eV]

Une formulation plus précise du critère de McWhirter a été faite par Hey [7] en introduisant notamment le facteur correctif  $\bar{G}$  appelé « facteur de Gaunt effectif » prenant en compte les effets quantiques d'absorption ou d'émission du rayonnement continu et dont les valeurs sont disponibles dans les tables de Regemorter [8]. La densité électronique minimale pour l'existence de l'ETL est alors donnée par l'équation :

$$N_e^* = \frac{2,55 \times 10^{23}}{\bar{G}} \left( \frac{\Delta E_{ul}}{E_H} \right)^3 \left( \frac{k_B T_e}{E_H} \right)^{1/2} \quad 1.34$$

$N_e^*$  : densité électronique limite [m<sup>-3</sup>]

$T_e$  : température électronique [K]

$E_H$  : énergie d'ionisation des atomes d'hydrogène [eV]

$\Delta E_{ul}$  : plus grand écart d'énergie entre niveaux de transition adjacents  $|u\rangle$  et  $|l\rangle$   
[eV]

$\bar{G}$  : facteur de Gaunt effectif

#### 1.4.1.2 Cas d'un plasma homogène et transitoire

Ce type de plasma est caractérisé par une absence de forts gradients de densités d'espèces et de températures à un instant donné mais les paramètres du plasma évoluent au cours du temps. Les critères de Griem ou de Hey deviennent alors des conditions nécessaires mais pas suffisantes pour garantir l'existence de l'ETL ou de son approximation (ETL partiel). Il est alors nécessaire de vérifier aussi le critère de stationnarité. C'est-à-dire qu'à partir d'un instant  $t$ , les paramètres du plasma ( $T_e$  ;  $N_e$ ) ne varient pas de façon importante sur une durée égale au temps de relaxation  $\tau_{rel}$  qui correspond à la durée de l'établissement des équilibres d'excitation et d'ionisation :

$$\left| \frac{T_e(t + \tau_{rel}) - T_e(t)}{T_e(t)} \right| \ll 1 ; \left| \frac{N_e(t + \tau_{rel}) - N_e(t)}{N_e(t)} \right| \ll 1 \quad 1.35$$

Le calcul du temps de relaxation a été fait par Griem [4] et Drawin [6] en considérant seulement les processus les plus lents dans l'établissement de l'équilibre thermodynamique, à savoir la durée du repeuplement du niveau fondamental à partir du premier état excité. Le temps de relaxation est alors donné par la relation [9] :

$$\tau_{rel} \approx \frac{6,3 \times 10^{10} \times \alpha_0}{N_e f_{12} \bar{G}} \Delta E_{12}^{1/2} \exp\left(\frac{\Delta E_{12}}{k_B T_e}\right) \quad 1.36$$

$\tau_{rel}$ : temps de relaxation	[s]
$N_e$ : densité électronique	[m <sup>-3</sup> ]
$k_B T_e$ : énergie thermique	[eV]
$\Delta E_{12}$ : écart d'énergie entre l'état fondamental et le premier état excité	[eV]
$f_{12}$ : force d'oscillation de la transition	
$\alpha_0$ : taux d'ionisation	

#### 1.4.1.3 Cas d'un plasma inhomogène et transitoire

Lorsque le plasma est transitoire et comporte de forts gradients de densité d'espèces qui diffusent vers des zones où les paramètres du plasma varient, la vérification de l'existence de l'ETL se fait en introduisant, en plus du critère de Griem ou de Hey et du critère de stationnarité, le critère d'homogénéité. En d'autres termes, pendant une durée égale au temps de relaxation, la longueur de diffusion des espèces  $\Lambda$  à partir d'une position  $x$  doit être inférieure à la longueur de variation des paramètres du plasma :

$$\left| \frac{T_e(x + \Lambda) - T_e(x)}{T_e(x)} \right| \ll 1 ; \left| \frac{N_e(x + \Lambda) - N_e(x)}{N_e(x)} \right| \ll 1 \quad 1.37$$

La longueur de diffusion des espèces  $\Lambda$  [m] est reliée au temps de relaxation  $\tau_{rel}$  et au coefficient de diffusion  $D$  par :

$$\Lambda = (D \times \tau_{rel})^{1/2} \quad 1.38$$

Pour un plasma avec un degré d'ionisation modéré (supérieur à 1 %), ce qui est le cas pour les plasmas étudiés ici, les collisions élastiques sont négligeables devant les collisions résonnantes par échange de charges pour une même espèce chimique. Dans ces conditions, le coefficient de diffusion de la particule ( $j$ ) dans un plasma composé d'une seule espèce chimique est approximativement donné par Drawin [6] et Cristoforetti [9] :

$$D \approx 3 \times 10^9 \frac{k_B T_e}{N_i M_j} \quad 1.39$$

$D$ : coefficient de diffusion	[m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> ]
$N_i$ : densité totale des ions	[m <sup>-3</sup> ]

## Partie 1 : Généralités sur les plasmas

$M_j$  : masse relative de la particule diffusante par rapport à la masse de l'hydrogène  $m_H$

$k_B T_e$  : énergie thermique [eV]

# **Partie 2 : Diagnostic des plasmas : Méthodes mises en œuvre**



## 2 Diagnostic des plasmas : Méthodes mises en œuvre

### 2.1 La Spectroscopie Optique d'Émission (SOE)

La Spectroscopie Optique d'Émission (SOE) est une technique de caractérisation de plasma utilisant le rayonnement produit et émis par ce dernier uniquement. Son caractère non intrusif et la possibilité de diagnostiquer des plasmas lointains en font un outil majeur largement utilisé en analyse de milieux plasmagènes. La SOE permet, selon les conditions expérimentales, de déterminer des densités d'espèces, des températures et la composition élémentaire d'un plasma. Cependant, les équations permettant d'accéder à ces grandeurs caractéristiques du plasma reposent sur les hypothèses d'équilibre définies dans les sections 1.3 et 1.4 qui ne sont pas toujours valides et surtout sous-entendues mais non vérifiées, ce qui constitue son principal inconvénient.

#### 2.1.1 Spectre continu

Le spectre continu, ou « fond continu », ou encore continuum, est le rayonnement provenant des collisions entre les électrons de masse  $m_e$  et les particules lourdes dont voici les deux sources les plus importantes :

- Le rayonnement de freinage des électrons (« Bremsstrahlung »)

Pour une distribution des vitesses maxwellienne à la température  $T_e$ , le coefficient d'émission de freinage  $\epsilon_f$  à la fréquence  $\nu$  est de la forme [10], [11] :

$$\epsilon_f(\nu, T_e) = C_1 z^2 \frac{N_e N_i^{(z)}}{\sqrt{T_e}} G_z(\nu, T_e) \quad 2.1$$

où

$$C_1 = \frac{16\pi q_e^6}{3c^3 (6\pi m_e^3 k_B)^{1/2} (4\pi\epsilon_0)^3} = 5,44 \times 10^{-52} \text{ J} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{K}^{1/2} \cdot \text{sr}^{-1} \quad 2.2$$

$N_i^{(z)}$  : densité des ions  $z$  fois ionisés [m<sup>-3</sup>]

$N_e$  : densité électronique [m<sup>-3</sup>]

$G_z(\nu, T_e)$  : facteur de Gaunt

- Le rayonnement de recombinaison

Cette émission lumineuse résulte de la capture d'un électron libre par un ion  $z$  fois ionisé dans l'état fondamental de densité  $N_1^{(z)}$ . Dans le cas des ions non

hydrogénoïdes, si la distribution des vitesses est maxwellienne à la température  $T_e$ , le coefficient d'émission de recombinaison  $\epsilon_r$  à la fréquence  $\nu$  est de la forme :

$$\epsilon_r(\nu, T_e) = C_1 z^2 \frac{N_e N_1^{(z)}}{\sqrt{T_e}} \xi_z(\nu, T_e) \left[ 1 - \exp\left(-\frac{h\nu}{k_B T_e}\right) \right] \quad 2.3$$

où  $\xi_z(\nu, T_e)$  est le facteur de Biberman dont les valeurs peuvent être trouvées dans [12]–[14] pour les gaz rares et divers éléments comme Li, C, N, O, Mg, Al, S ou Hg [10].

Le continuum total, qui est la somme des rayonnements de freinage et de recombinaison, peut être utilisé pour calculer  $N_e$  ou  $T_e$  en connaissant déjà l'un ou l'autre pour des plasmas optiquement minces [15]–[17]. Cette méthode est donc très précieuse pour le diagnostic des plasmas puisque les *équations 2.1* et *2.3* restent valables dans les zones hors ETL [15].

### 2.1.2 Spectre discret

Il s'agit de l'émission de photons par un atome ou une molécule qui passe alors d'un niveau d'énergie  $|u\rangle$  à un autre niveau d'énergie inférieur  $|l\rangle$  (désexcitation radiative). Le coefficient d'émission d'une raie spectrale, ou émissivité, est donné par la relation :

$$\epsilon_{ul}(T) = \frac{hc}{4\pi} \frac{A_{ul}}{\lambda_{ul}} N_u^{(z)}(T) \quad 2.4$$

$$\lambda_{ul} = \frac{c}{\nu_{ul}} \quad 2.5$$

$A_{ul}$  : probabilité de la transition [s<sup>-1</sup>]

$N_u^{(z)}$  : densité des émetteurs au niveau d'énergie  $|u\rangle$  de degré d'ionisation  $z$  [m<sup>-3</sup>]

$\nu_{ul}$  : fréquence de la transition [Hz]

$\lambda_{ul}$  : longueur d'onde de la transition [m]

### 2.1.3 Auto-absorption

Avec le principe de micro-réversibilité des processus, la désexcitation radiative est contrebalancée par l'absorption de l'émission par des particules moins énergétiques. Nous parlons d'auto-absorption lorsque le photon émis par une particule est absorbé par le même type de particule. Ce phénomène est plus fréquent lorsque le niveau inférieur de la transition est le niveau fondamental ou un niveau métastable mais aussi lorsque le

plasma est optiquement épais avec une augmentation de la probabilité d'absorption des photons. En particulier, les particules situées en périphérie du plasma, dont les températures sont plus faibles, sont les plus susceptibles d'absorber le rayonnement.

Dans le cas d'une auto-absorption faible, le pic central de la raie est « aplati ». Ce qui n'est pas forcément visible sur le profil de la raie mais peut entraîner des erreurs de calcul de température et de densité électronique basés respectivement sur les intensités des raies d'émission et leurs élargissements Stark.

Les phénomènes d'auto-absorptions sont parfois si importants que la raie est partiellement « creusée » ou complètement inversée (cf. *Figure 2-1*), on parle alors d'auto-inversion, plus fréquente pour les plasmas inhomogènes [18].

Lors d'une caractérisation d'un plasma par SOE, il est préférable d'utiliser des raies non ou faiblement auto-absorbées. La vérification de l'auto-absorption peut se faire en comparant l'intensité d'une émission directe avec celle d'une émission rétrodiffusée dans le plasma [19]. La raie peut alors être considérée comme non auto-absorbée lorsque le rapport des deux intensités (directe et rétrodiffusée) est quasiment constant sur tout le spectre.

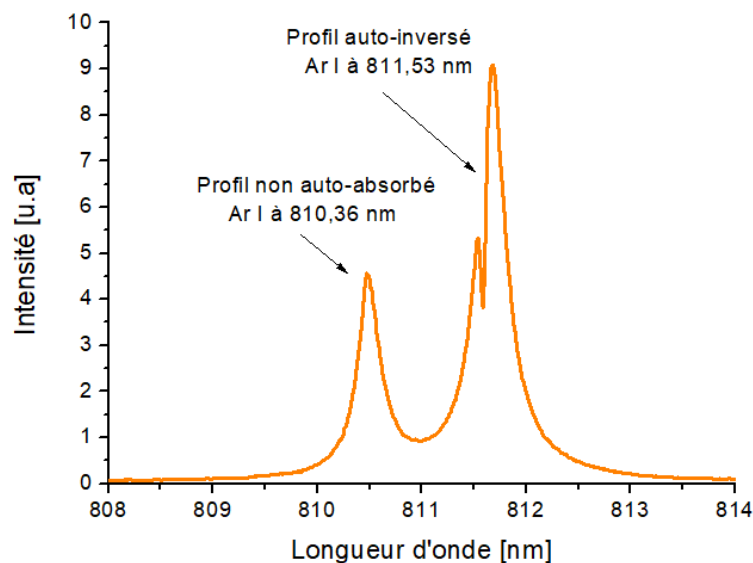


Figure 2-1 : Exemple de deux raies d'argon neutre, l'une non auto-absorbée et l'autre auto-inversée, enregistrées latéralement.

L'auto-inversion n'est pas située sur le pic de la raie d'Ar I à 811,53 nm car les raies des zones centrales, plus chaudes, sont décalées vers le rouge par effet Stark, alors que les particules absorbantes situées en périphérie plus froide du plasma ne subissent pas cet effet Stark.

### 2.1.4 Élargissement des raies spectrales

Les photons émis par désexcitation radiative d'une particule (atome, ion ou molécule), possèdent une longueur d'onde caractéristique et unique. Le spectre correspondant serait donc typiquement composé de raies spectrales infiniment fines (spectres en Dirac). Mais en réalité, plusieurs phénomènes entraînent un élargissement en longueur d'onde des raies lumineuses, indépendamment de toute hypothèse sur l'état d'équilibre du plasma.

#### 2.1.4.1 Élargissement naturel

La durée de vie d'un état excité admet une valeur finie  $\Delta t$  [s], celle-ci est inversement proportionnelle au coefficient d'Einstein d'émission spontanée  $A_{ul}$  [ $s^{-1}$ ]. Par conséquent, l'application du principe d'incertitude d'Heisenberg fait apparaître une variation de  $\Delta E_u$  du niveau d'énergie de l'émetteur telle que  $\Delta t \times \Delta E_u \geq h/2\pi$ . Puisque  $\Delta E_u = h\Delta\nu$ , la raie est donc élargie en fréquence de  $\Delta\nu$  et cet élargissement dit « naturel » suit un profil d'élargissement de type lorentzien dont la largeur à mi-hauteur exprimée en longueur d'onde  $\Delta\lambda_N$  est donnée par la relation :

$$\Delta\lambda_N = \frac{\lambda_0^2 \times A_{ul}}{2\pi c} \quad [\text{m}] \quad 2.6$$

où  $\lambda_0$  [m] est la longueur d'onde centrale et  $A_{ul}$  [ $s^{-1}$ ] est le coefficient d'Einstein d'émission spontanée de la transition énergétique du niveau  $|u\rangle$  vers le niveau  $|l\rangle$ . L'élargissement naturel est donc d'autant plus important que la probabilité de transition est élevée, *i.e.* que la durée de vie du niveau est faible.

En général, les élargissements naturels sont négligeables devant les autres types d'élargissement. Par exemple, les élargissements naturels des raies d'argon Ar I à 696,5 nm et Ar II à 480,6 nm valent respectivement  $1,6 \times 10^{-6}$  nm et  $9,6 \times 10^{-6}$  nm.

#### 2.1.4.2 Élargissement Doppler

Lorsqu'une particule émettant de la lumière à la longueur d'onde  $\lambda_0$  se rapproche d'un détecteur à la vitesse  $v$ , cela entraîne une diminution de la longueur d'onde enregistrée d'un facteur  $v/c$ , où  $c$  correspond la vitesse de la lumière dans le vide. Inversement ; si la particule en question s'éloigne du détecteur à la vitesse  $v$ , alors la longueur d'onde enregistrée augmente du même facteur. Dans le cas d'un ensemble de particules où la répartition des vitesses des particules radiatives, non relativistes, de masse  $m$  et de température  $T$ , suit une distribution maxwellienne, l'intensité lumineuse totale enregistrée autour d'une transition de longueur d'onde  $\lambda_0$ , suit un profil de raie de type gaussien centré à  $\lambda_0$  et donné par la relation :

$$I(\lambda) = I(\lambda_0) \times \exp \left[ - \left( \frac{\lambda - \lambda_0}{\Delta\lambda_D} \right)^2 \right] \quad 2.7$$

où la largeur totale à mi-hauteur  $\Delta\lambda_D$  de l'élargissement « Doppler » du profil est reliée à la demi-largeur  $\Delta\lambda_v$  à 1/e par la relation :

$$\Delta\lambda_D = 2 \sqrt{\ln(2)} \times \Delta\lambda_v = \frac{\lambda_0}{c} \sqrt{\frac{8 \ln(2) \times k_B T}{m}} \quad [\text{m}] \quad 2.8$$

$\lambda_0$  : longueur d'onde centrale de la transition [m]

$T$  : température de la particule [K]

$m$  : masse de la particule [kg]

Par exemple, pour une température de 10000 K, les élargissements Doppler des raies 696,5 nm d'argon Ar I et 480,6 nm d'argon Ar II valent respectivement  $7,9 \times 10^{-6}$  nm et  $5,4 \times 10^{-6}$  nm ; elles passent respectivement à  $1,8 \times 10^{-2}$  nm et  $1,2 \times 10^{-2}$  nm pour une température de 50000 K.

### 2.1.4.3 Élargissement par effet de pression

Les collisions entre les particules du plasma (atomes, ions, électrons) entraînent une perturbation des états excités et une modification de leurs durées de vie. Il en résulte un élargissement de largeur totale à mi-hauteur  $\Delta\lambda$  et un déplacement en longueur d'onde  $\Delta d$  de la raie spectrale qui suit alors le profil lorentzien suivant :

$$I(\lambda) = I(\lambda_0) \frac{\Delta\lambda}{2 \left[ (\lambda - \lambda_0 + \Delta d)^2 + \left( \frac{\Delta\lambda}{2} \right)^2 \right]} \quad 2.9$$

Les élargissements par effet de pression (ou par collision) sont causés par des phénomènes distincts qui dépendent de la nature du partenaire de collision.

- Élargissement de résonance

Ce type d'élargissement est provoqué par une collision entre deux particules neutres de même nature mais dans des états excités  $|n\rangle$  et  $|m\rangle$  différents. L'effet de cette collision n'est important que si l'un des deux états est couplé au fondamental et l'échange d'énergie qui en résulte entraîne alors un élargissement total à mi-hauteur dite de résonance  $\Delta\lambda_R$  qui peut s'exprimer dans l'approximation d'impact comme suit [3], [20] :

$$\Delta\lambda_R = 2 \times 2,739 \times \pi \sqrt{\frac{g_f}{g_r}} f_r N_0 \left( \frac{q_e^2}{4\pi\epsilon_0} \right) \left( \frac{\lambda_0^3}{2\pi m_e c} \right) \quad [\text{m}] \quad 2.10$$

L'interaction de résonance n'entraîne pas un déplacement de la raie spectrale.

$g_f$  : poids statistique du niveau fondamental

$g_r$  : poids statistique du niveau résonnant

$f_r$  : force d'oscillateur du niveau résonnant

$N_0$  : densité des espèces dans le niveau fondamental [m<sup>-3</sup>]

Les transitions que nous avons observées et utilisées dans ce manuscrit ne sont pas concernées, car aucun des niveaux considérés n'est couplé au fondamental.

- Élargissement de Van der Waals

L'élargissement de Van der Waals est provoqué par la collision entre l'atome émetteur et un atome neutre de nature différente ou un atome identique dont le niveau supérieur de la transition en question n'est pas couplé au niveau fondamental. L'élargissement total à mi-hauteur  $\Delta\lambda_V$  et le déplacement en longueur d'onde  $\Delta d_V$  de la raie spectrale induits sont donnés, dans « l'approximation d'impact » caractérisée par une interaction rapide avec un perturbateur de type électron, par la relation [20] :

$$\Delta\lambda_V = 8,16 \times (C_6)^{2/5} (\bar{v})^{3/5} N_0 \frac{\lambda_0^2}{2\pi c} \quad 2.11$$

$$\Delta d_V = 2,94 \times (C_6)^{2/5} (\bar{v})^{3/5} N_0 \frac{\lambda_0^2}{2\pi c} \quad 2.12$$

$C_6$  : constante d'interaction de Van der Waals [m<sup>6</sup>.s<sup>-1</sup>]

$\bar{v}$  : vitesse relative moyenne des deux particules [m.s<sup>-1</sup>]

$N_0$  : densité des perturbateurs neutres [m<sup>-3</sup>]

L'élargissement de Van der Waals reste toujours très faible (de l'ordre de 10<sup>-6</sup> nm) dans nos conditions expérimentales.

- Élargissement Stark

Lorsque la particule radiative entre en collision avec une particule chargée (électron ou ion), les niveaux d'énergie initial et final de la transition sont modifiés par l'action du micro-champ électrique dans le milieu : c'est la dégénérescence des niveaux d'énergies. Il en résulte un élargissement et un déplacement du centre de la raie. La description de ce phénomène, appelé « effet Stark », nécessite une quantification de tous les micro-champs électriques en tenant compte aussi de leurs évolutions temporelles.

Ainsi, deux cas limites sont considérés : « l'approximation d'impact » (si le perturbateur est un électron, caractérisée par une interaction rapide) et « l'approximation quasi-statique » si le perturbateur est un ion, dont le temps d'interaction est grand comparé à la durée de la radiation.

Pour des atomes non hydrogénoïdes, Griem [3] a formulé la distribution spectrale  $J(x)$  du profil lorentzien de la raie à partir de ces deux cas limites :

$$J(x) = \frac{1}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{W_r(\beta_0)}{1 + (x - \alpha^{4/3} \beta_0^2)^2} d\beta_0 \quad 2.13$$

où  $W_r(\beta_0)$  est la fonction de distribution de Holtsmark des micro-champs créés par les particules chargées à la position  $x$  de l'émetteur et  $\beta_0 = E/E_0$  est le micro-champ normalisé en notant  $E_0$  le champ de Holtsmark défini par [1] :

$$E_0 = \frac{q_e}{4\pi\epsilon_0} \left( \frac{4\pi N_e}{3} \right)^{2/3} \quad 2.14$$

Le paramètre  $x = (\lambda - \lambda_0 - d_e)/w_e$  est la longueur d'onde réduite avec  $\lambda$  et  $\lambda_0$  la longueur d'onde et la longueur d'onde centrale, respectivement. Les paramètres  $\alpha_0$ ,  $w_e$  et  $d_e$  sont respectivement le paramètre d'élargissement dû aux ions, la mi-largeur à mi-hauteur due aux électrons et le déplacement dû aux électrons. L'élargissement Stark total théorique, de largeur totale à mi-hauteur  $\Delta\lambda_S$ , et le déplacement  $\Delta d_S$ , du centre de la raie théorique sont liés à la densité électronique et la température par les relations :

$$\Delta\lambda_S = 2[1 + 1,75 \times \alpha_0(1 - c_0 r)]w_e \quad 2.15$$

$$\Delta d_S = \left[ \frac{d_e}{w_e} \pm 2 \times \alpha_0(1 - c_0 r) \right] w_e \quad 2.16$$

Le déplacement du centre de la raie théorique ( $\Delta d_S$ ) peut être positif (dirigé vers le rouge) ou négatif (dirigé vers le bleu). Le paramètre  $r$  est le rapport entre la distance moyenne entre deux ions et la longueur de Debye ;  $c_0$  est une constante égale à 0,75 pour les atomes neutres et 1,2 pour les ions. Les paramètres  $\alpha_0$ ,  $w_e$  [Å] et  $d_e$  [Å] peuvent être calculés à partir de leurs valeurs normalisées respectives ( $\alpha_n$ ,  $w_n$  et  $d_e/w_n$ ) qui ont été tabulées par Griem [3], [21] à différentes températures et pour une densité électronique normalisée de  $N_e^0 = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ .

$$\begin{cases} \alpha_0 = \left( \frac{N_e}{10^{16}} \right)^{\frac{1}{4}} \times \alpha_n(T_e) \\ w_e = \left( \frac{N_e}{10^{16}} \right) \times w_n(T_e) \\ r \simeq 9 \times 10^{-3} N_e^{1/6} T_e^{-1/2} \end{cases} \quad 2.17$$

où  $N_e$  et  $T_e$  sont respectivement la densité électronique [ $\text{cm}^{-3}$ ] et la température électronique [K]. Les équations 2.15 et 2.16 sont applicables pour  $r \leq 0,8$  et  $0,05 \leq \alpha_0 \leq 0,5$ .

Typiquement, pour une température de 22000 K, les élargissements Stark normalisés des raies 696,5 nm d'argon Ar I et 480,6 nm d'argon Ar II valent respectivement  $7,9 \times 10^{-3}$  nm [22] et  $3,23 \times 10^{-2}$  nm [22], pour  $N_e^0 = 10^{17}$   $\text{cm}^{-3}$ .

Étant donné que l'élargissement et le déplacement Stark sont liés à la densité électronique indépendamment de l'état d'équilibre du milieu, avec en générale une faible dépendance à sa température, ils sont largement utilisés pour diagnostiquer des plasmas, notamment dans ce manuscrit, même si les valeurs théoriques proposées par Griem ne semblent pas toujours valides [23]. A cet égard, de nombreux travaux existent dans la littérature pour mesurer les valeurs normalisées des élargissements et déplacements Stark de raies spectrales d'intérêt scientifique, astrophysique ou technologique [24], et la modélisation du comportement de raies spectrales reste un sujet d'actualité pour différents domaines d'applications [25], [26].

#### 2.1.4.4 Élargissement instrumental ou fonction d'appareil

Il représente l'élargissement, généralement de type gaussien, des raies induit par l'ensemble des composantes optiques du dispositif expérimental. Notamment, lorsqu'un spectromètre à réseau est utilisé, il traduit l'influence de la largeur de la fente d'entrée et des caractéristiques de l'élément dispersif (le réseau) sur le profil initial de la raie spectrale. Cet élargissement total à mi-hauteur  $\Delta\lambda_{app}$  est fonction de la longueur d'onde  $\lambda$  est donné par l'équation suivante :

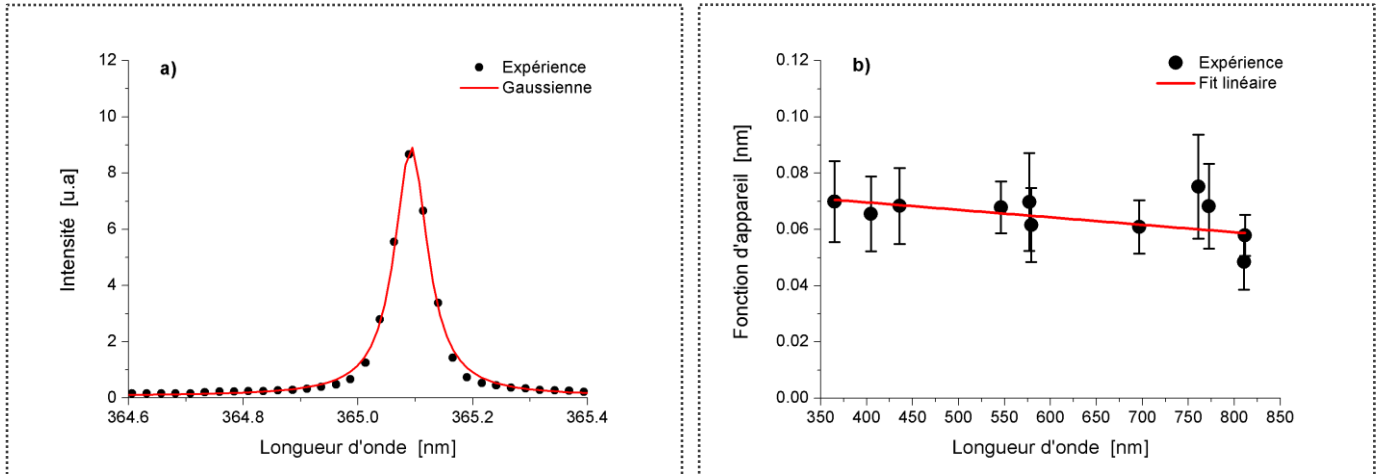
$$\Delta\lambda_{app} = \frac{2d}{kL} \sqrt{1 - \left(\frac{k\lambda}{2d}\right)^2} \delta x \quad 2.18$$

où  $d$  est le pas du réseau,  $k$  est l'ordre de diffraction de travail,  $L$  est la distance focale du miroir de focalisation du rayonnement sur la fente d'entrée du spectromètre et  $\delta x$  est la distance entre deux points différenciables en sortie du spectromètre (typiquement, distance entre deux pixels du capteur ICCD, cf. sous-section 3.5.4, page 67).

Pour prendre en compte les imperfections du dispositif expérimental, la détermination de la fonction d'appareil se fait préférentiellement de manière expérimentale en utilisant une lampe à décharge basse pression ( $\text{Ar}$  ;  $\text{Hg}$ ) émettant sur une large gamme spectrale des raies bien isolées dont les élargissements naturel et Doppler sont négligeables. La largeur totale à mi-hauteur d'une raie expérimentale à la longueur d'onde  $\lambda$ , déterminée par une approximation avec une fonction gaussienne (cf. Figure 2-2 : a)), correspond donc à l'élargissement du dispositif expérimental. Sur la Figure 2-2 : b) est représentée la fonction d'appareil du dispositif expérimental, utilisé dans le cadre des travaux dans ce manuscrit, en fonction de la longueur d'onde du rayonnement incident, pour un réseau de  $1200$  traits. $\text{mm}^{-1}$  et avec une ouverture de la fente d'entrée du spectromètre  $e_{spect} = 30$   $\mu\text{m}$  : on peut constater que, avec les barres d'incertitude



considérées, elle reste quasiment constante et de l'ordre de  $6,5 \times 10^{-2}$  nm entre 350 nm et 850 nm.



a) Raie de mercure neutre à 365,01 nm ;

b) Fonction d'appareil en fonction de la longueur d'onde ;

Figure 2-2 : Détermination de la fonction d'appareil ; Réseau de 1200 traits.mm<sup>-1</sup> ;  $e_{spect} = 30$  μm.

#### 2.1.4.5 Profil résultant des élargissements

Finalement, une raie spectrale enregistrée expérimentalement regroupe toutes les formes d'élargissement précédentes. Son profil résultant, appelé profil de Voigt, est le produit de convolution du profil global lorentzien de largeur à mi-hauteur  $\Delta\lambda_L$  telle que :

$$\Delta\lambda_L = \Delta\lambda_N + \Delta\lambda_R + \Delta\lambda_V + \Delta\lambda_S \quad 2.19$$

et du profil global gaussien de largeur à mi-hauteur  $\Delta\lambda_G$  telle que :

$$\Delta\lambda_G = \sqrt{\Delta\lambda_D^2 + \Delta\lambda_{app}^2} \quad 2.20$$

Dans nos conditions expérimentales, la partie lorentzienne est complètement dominée par l'élargissement Stark ( $\Delta\lambda_L \approx \Delta\lambda_S$ ) et la partie gaussienne du profil est largement dominée par la fonction d'appareil ( $\Delta\lambda_G \approx \Delta\lambda_{app}$ ).

### 2.1.5 Méthodes de diagnostic par SOE

La caractérisation d'un plasma par SOE passe par l'exploitation de son émission lumineuse, généralement enregistrée *side-on* (transversalement) en intégrant tout le rayonnement émis sur la ligne de visée optique : il est alors nécessaire de mettre en œuvre des procédures d'inversion pour remonter aux caractéristiques locales du plasma.

Une fois les valeurs locales de l'émission des raies spectrales évaluées, il est alors possible, sous différentes hypothèses (notamment souvent d'ETL), de déterminer les paramètres essentiels du plasma tels que les températures et les densités d'espèces. De nombreuses méthodes existent : nous ne présenterons ici que celles que nous avons finalement décidé de mettre en œuvre.

#### 2.1.5.1 Inversion d'Abel

Dans le cas d'un plasma présentant une symétrie cylindrique (rayon  $R$ ) et observé latéralement par un système de détection, le spectre obtenu correspond à l'émission totale intégrée spatialement le long d'une ligne de visée située à une distance  $y$  du centre du plasma. Afin d'accéder à la répartition radiale de l'intensité lumineuse locale  $I_\lambda(r)$  pour une longueur d'onde  $\lambda$  donnée, une procédure d'inversion spatiale de l'intensité lumineuse spatialement intégrée  $\bar{I}_\lambda(y)$  est effectuée pour chaque ligne de visée (cf. *Figure 2-3*). Il s'agit de « l'inversion d'Abel » [27] dont l'expression mathématique est la suivante :

$$I_\lambda(r) = -\frac{1}{\pi} \int_r^R \frac{d\bar{I}_\lambda(y)}{dy} \frac{dy}{\sqrt{y^2 - r^2}} \quad 2.21$$

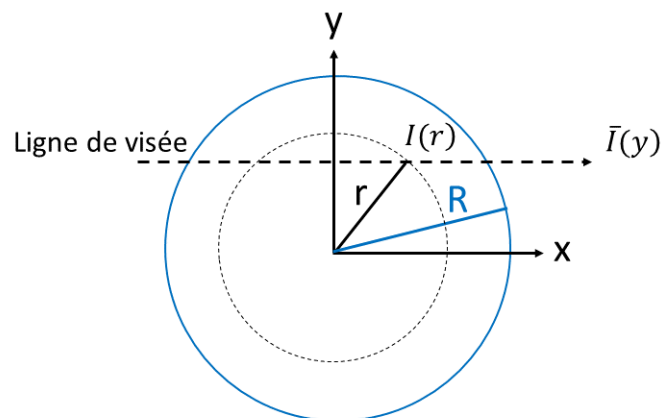


Figure 2-3 Schéma du principe d'inversion d'Abel.

Cette procédure permet ainsi d'accéder à la répartition radiale  $I_\lambda(r)$  de l'émission du plasma à condition que ce dernier soit optiquement mince, de symétrie cylindrique et que l'on sache en évaluer le rayon. Dans ces conditions, il existe plusieurs algorithmes de résolution de l'intégrale d'inversion d'Abel [28], [29]. Nous utilisons un programme développé au laboratoire sous LABWINDOWS qui permet de calculer l'intensité radiale avec une méthode d'intégration numérique utilisant un lissage des données par des fonctions « splines cubiques » afin de pallier à la difficulté numérique liée à la présence de la dérivée au numérateur (amplification des bruits) [30].

Le logiciel de traitement des données permet, à la suite de l'inversion d'Abel et pour chaque position radiale  $r$  de la section de plasma observée, d'ajuster le profil de raie  $I_\lambda(r)$  à un profil de Voigt en imposant comme contribution gaussienne celle liée à la fonction d'appareil, afin d'en extraire les paramètres spectroscopiques utiles : fond continu sous la raie ; déplacement, coefficient d'émission et élargissement Stark (assimilé à la partie lorentzienne du profil) de la raie spectrale.

### 2.1.5.2 Détermination de $T_{ex}$ par la méthode du graphe de Boltzmann

Lorsque la densité de population des niveaux excités  $N_{j,u}^{(z)}$  suit une distribution de Boltzmann (cf. *équation 1.24*), l'émissivité d'une transition radiative du niveau  $|u\rangle$  vers le niveau  $|l\rangle$  de l'espèce ( $j$ ) dans l'état d'ionisation  $z$  (cf. *équation 2.4*) s'exprime comme suit :

$$\epsilon_{ul} = \frac{hc}{4\pi} \frac{A_{ul}}{\lambda_{ul}} \frac{N_j^{(z)}}{U_j^{(z)}} g_{j,u}^{(z)} \exp\left(-\frac{E_{j,u}^{(z)}}{k_B T_{ex}}\right) \quad 2.22$$

Une transformation logarithmique de l'*équation 2.22* fait apparaître une fonction linéaire  $Y_{ul}(E_{j,u}^{(z)})$  dont la pente est inversement proportionnelle à la température d'excitation :

$$Y_{ul} = \ln\left(\frac{\epsilon_{ul} \lambda_{ul}}{g_{j,u}^{(z)} A_{ul}}\right) = \ln\left(\frac{hc}{4\pi} \frac{N_j^{(z)}}{U_j^{(z)}}\right) - \frac{E_{j,u}^{(z)}}{k_B T_{ex}} \quad 2.23$$

La méthode du graphe de Boltzmann consiste à tracer  $Y_{ul}$  en fonction de l'énergie  $E_{j,u}^{(z)}$  pour un nombre suffisant de raies spectrales. La probabilité de transition  $A_{ul}$ , le poids statistique  $g_{j,u}^{(z)}$  et l'énergie  $E_{j,u}^{(z)}$  du niveau supérieur de la transition de longueur d'onde  $\lambda_{ul}$ , sont disponibles dans les bases de données du NIST [2] ou de R. L. Kurucz [31]. Les termes  $N_j^{(z)}$  et  $U_j^{(z)}$  sont constants pour toutes les raies spectrales d'un même élément ( $j$ ) dans un état d'ionisation  $z$ . Si l'équilibre d'excitation est bien vérifié au point de mesure dans le plasma, alors la courbe résultante est une droite dont la pente permet de déterminer la température d'excitation  $T_{ex}$ , égale à la température électronique  $T_e$  si l'ETL est vérifié. La précision de la mesure de  $T_{ex}$  par la méthode du graphe de

Boltzmann dépend entre autre de la détermination de l'intensité des raies spectrales considérées, de leur isolement spectral, de leur faible auto-absorption, de la précision avec laquelle leurs probabilités de transition sont connues, et de l'étendue de la gamme d'énergies  $E_{j,u}^{(z)}$ . L'erreur de mesure typique du graphe de Boltzmann est estimée à environ 20 % [17].

### 2.1.5.3 Détermination de $T_{ion}$ par graphe de Saha-Boltzmann

La méthode de Saha-Boltzmann est une technique de mesure de température d'ionisation  $T_{ion}$  reposant à la fois sur les lois de distribution de Boltzmann et de Saha (cf. équation 1.26). Cette méthode présente l'intérêt de prendre en compte une plus grande répartition de l'énergie entre les états excités et ionisés. La mesure de température est donc plus précise qu'en utilisant un graphe de Boltzmann. Pour deux raies d'émission  $\epsilon_{ul}^{(z)}$  et  $\epsilon_{u'l'}^{(z)}$ , d'un même élément ( $j$ ) à des degrés d'ionisations successifs  $z$  et  $z+1$ , de niveaux d'énergies respectives  $E_{j,u}^{(z)}$  et  $E_{j,u'}^{(z+1)}$ , la relation de Saha-Boltzmann est donnée par le rapport suivant :

$$\ln\left(\frac{Y_{ul}^{(z)}}{Y_{u'l'}^{(z+1)}}\right) = -\frac{E_{j,u}^{(z)} - E_{j,u'}^{(z+1)} + E_{j,\infty}^{(z)} - \Delta E_{j,\infty}^{(z)}}{k_B T_{ion}} \quad 2.24$$

$$+ \ln\left(2 \frac{(2\pi m_e k_B)^{\frac{3}{2}} T_{ion}^{\frac{3}{2}}}{h^3} \frac{T_{ion}^{\frac{3}{2}}}{N_e}\right) + Cte$$

$$\text{avec } Y_{ul}^{(z)} = \frac{\epsilon_{ul}^{(z)} \lambda_{ul}^{(z)}}{g_{j,u}^{(z)} A_{ul}^{(z)}} \text{ et } Y_{u'l'}^{(z+1)} = \frac{\epsilon_{u'l'}^{(z+1)} \lambda_{u'l'}^{(z+1)}}{g_{j,u'}^{(z+1)} A_{u'l'}^{(z+1)}}$$

où  $E_{j,\infty}^{(z)}$  et  $\Delta E_{j,\infty}^{(z)}$  sont respectivement l'énergie d'ionisation de l'élément ( $j$ ) dans l'état d'ionisation  $z$  et son Abaissement de Potentiel d'Ionisation (API).

L'application de cette méthode nécessite la connaissance préalable de la densité électronique  $N_e$ . Étant donné que  $T_{ion}$  apparaît sur les deux termes de l'équation 2.24, une procédure itérative est utilisée pour résoudre cette équation en choisissant une valeur de  $T_{ion}$  initiale arbitraire [32]. Il est à noter qu'une autre méthode, dérivée de celle de Saha-Boltzmann, a été développée par Bye et Scheeline [33] pour déterminer  $T_{ion}$  lorsque la densité électronique est initialement inconnue. Enfin, une approche multiéléments a été proposée par Aguilera et Aragon [34] comme une généralisation de la méthode de Saha-Boltzmann afin de l'appliquer aux mesures spectroscopiques spatialement résolues et utilisant des raies d'émission issues de différents éléments présents dans le milieu plasmagène. Cette approche multiéléments n'a pas été appliquée dans le cadre de l'étude présenté dans ce manuscrit (cf. chapitre 3) en raison du faible rapport signal/bruit de

l'intensité des raies spectrales d'éléments secondaires (en l'occurrence le cérium) qui les rend inexploitable.

#### 2.1.5.4 Détermination de $N_e$ par mesure des élargissements Stark

La mesure de la densité électronique d'un plasma par l'élargissement Stark des raies d'émission (cf. *équation 2.15*) consiste à utiliser la relation de quasi-linéarité qui existe entre la densité électronique  $N_e$  et l'élargissement Stark  $\Delta\lambda_s$  lorsque l'on néglige l'effet de la contribution ionique et de la température électronique, ce qui est généralement vérifié pour des températures électroniques inférieures à 20000 K [18]. Un des principaux avantages de cette méthode est qu'elle est indépendante de l'état d'équilibre du plasma, et est, en quelque sorte, universelle, sous réserve de pouvoir extraire la composante Stark du profil de raie.

En pratique, la connaissance d'un couple  $(\Delta\lambda_s^0, N_e^0)$  pour une raie donnée via les tables de données expérimentales [21], [22], [35] permet de calculer la densité électronique inconnue par la relation suivante :

$$N_e = \frac{N_e^0}{\Delta\lambda_s^0} \Delta\lambda_s \quad 2.25$$

## 2.2 La diffusion Thomson (DT)

La diffusion Thomson est la diffusion des ondes électromagnétiques par des électrons libres. Ce phénomène a été prédit par J. J. Thomson [36] dès 1903 en étudiant le comportement de particules chargées se déplaçant dans un champ électromagnétique. Cependant, les moyens technologiques de l'époque ne permettaient pas d'observer ce type de diffusion dont le signal est relativement très faible. Il a donc fallu attendre le début des années 50 pour observer ce phénomène. En effet, entre le 23 février et le 6 juin 1953, pendant des études radar d'aurores boréales à Saskatoon au Canada, un écho anormal de réflexion est observé sur le signal détecté à partir de l'ionosphère inférieure [37]. Ces signaux sont dus à la diffusion des ondes radio par les particules chargées de l'ionosphère, d'après Bailey et al. [38]. La diffusion Thomson fut par la suite largement étudiée et reconnue comme moyen de diagnostic des sources plasmagènes notamment avec l'apparition des lasers de hautes puissances tels que les lasers à rubis ou au verre de néodyme [39]. Cette technique de diffusion des ondes électromagnétiques par les électrons libres d'un plasma apparaît donc comme un moyen puissant pour mesurer la température des électrons  $T_e$  et leurs densité  $N_e$ . Cette méthode de diagnostic a été pour la première fois utilisée pour caractériser un plasma de décharge toroïdale de type Tokamak en 1969 à l'Institut Kurchatov de Moscou afin de mesurer les températures électroniques les plus élevées jamais enregistrées dans un dispositif de fusion [40].

### 2.2.1 Principe de la diffusion par un électron

Selon les principes d'interaction rayonnement-matière, lorsqu'une onde électromagnétique de longueur d'onde  $\lambda_L$  interagit avec une particule chargée non relativiste, le champ électrique oscillant de l'onde provoque l'accélération de la particule qui va émettre un rayonnement électromagnétique dipolaire. La lumière diffusée est émise à la même fréquence que le rayonnement incident mais subit un double déplacement Doppler dû au mouvement de la particule émettrice par rapport à l'onde incidente et par rapport au détecteur.

Pour un plasma de longueur  $L \gg \lambda_L$ , considérons le champ électrique  $\mathbf{E}_i$  de l'onde électromagnétique plane monochromatique incidente, de norme  $E_{i0}$ , polarisée selon la direction du vecteur unitaire  $\mathbf{e}_i$ , de longueur d'onde  $\lambda_L$  et de fréquence  $\omega_L \gg \omega_{pe}$  (fréquence plasma électronique) de telle sorte que l'onde incidente pénètre dans le plasma. Selon ces considérations, le champ électrique  $\mathbf{E}_i$  est de la forme :

$$\mathbf{E}_i(\mathbf{r}, t') = \mathbf{E}_{i0} \exp[i(\mathbf{k}_L \times \mathbf{r} - \omega_L \times t')] \quad 2.26$$

En définissant un système de coordonnées sphériques (cf. *Figure 2-4*), le détecteur se trouve à la distance  $r$  de l'origine dans la direction du vecteur unitaire radial  $\mathbf{e}_r$  et l'onde diffusée se propage dans la direction du vecteur unitaire de diffusion  $\mathbf{e}_s$ .

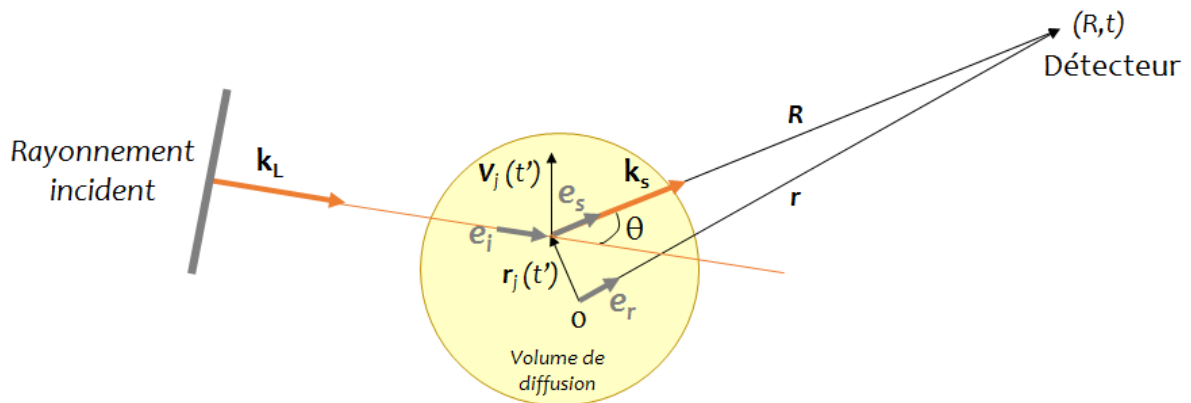


Figure 2-4 : Système de coordonnées sphériques de la diffusion.

L'électron ( $j$ ), situé à  $(\mathbf{r}_j, t')$ , ayant une vitesse  $\mathbf{v}_j(t')$  subit la force de Lorentz du champs électromagnétique incident. Si l'électron considéré est non relativiste ( $v_j \ll c$ ), en

appliquant la seconde loi de Newton et en négligeant l'effet du champ magnétique, l'accélération  $\mathbf{a}_j$  de l'électron vaut :

$$\mathbf{a}_j(t') = \frac{d\mathbf{v}_j(t')}{dt} = -\frac{q_e}{m_e} \mathbf{E}_i(\mathbf{r}_j, t') \quad 2.27$$

Cette accélération crée à la position  $\mathbf{R}$  et à l'instant  $t$  un champ électrique correspondant à l'onde diffusée  $\mathbf{E}_s(\mathbf{R}, t)$ . Le calcul de l'onde diffusée se fait à travers le potentiel vecteur  $\mathbf{A}$  et le potentiel scalaire  $\Phi$  de Liénard-Wiechert [41], qui décrivent le champ électromagnétique créé par une charge en mouvement, définis par :

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = -\frac{q_e}{4\pi\epsilon_0 c^2} \frac{v}{R - \frac{v\mathbf{R}}{c}} \quad 2.28$$

$$\Phi(\mathbf{r}, t) = -\frac{q_e}{4\pi\epsilon_0 c^2} \frac{1}{R - \frac{v\mathbf{R}}{c}} \quad 2.29$$

L'expression générale du champ électrique  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  qui découle de ces potentiels est donc de la forme :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\nabla\Phi - \frac{\partial\mathbf{A}}{\partial t} \quad 2.30$$

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{q_e}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{\left(R - \frac{v\mathbf{R}}{c}\right)^3} \left[ \left(\mathbf{R} - \frac{v\mathbf{R}}{c}\right) \left(1 - \frac{v^2}{c^2}\right) + \left(\mathbf{R} \wedge \left(\left(\mathbf{R} - \frac{v\mathbf{R}}{c}\right) \wedge \frac{\mathbf{a}}{c^2}\right)\right) \right] \quad 2.31$$

Dans cette expression, seule la composante du champ électrique dépendante de l'accélération  $\mathbf{a}$  correspond au champ diffusé  $\mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t)$ . En considérant une particule ( $j$ ) non relativiste (de vitesse  $v_j \ll c$ , et d'accélération  $\mathbf{a}_j$ ), l'expression de l'onde diffusée est simplifiée et s'écrit :

$$\mathbf{E}_s(\mathbf{R}, t) = -\frac{q_e}{4\pi\epsilon_0 c^2 R} [\mathbf{e}_s \wedge (\mathbf{e}_s \wedge \mathbf{a}_j(t'))] \quad 2.32$$

Il faut aussi noter que le rayonnement diffusé et détecté à l'instant  $t$  à la distance  $R$  de l'électron correspond au signal émis par ce même électron à l'instant antérieure  $t'$  lorsqu'il se trouvait à la position  $\mathbf{r}_j(t_0)$ . Il est donc utile de considérer le champ électrique incident à l'instant retardé  $t'$  défini par :

$$t' = t - \frac{R}{c} \quad 2.33$$

En introduisant le rayon classique de l'électron

$$r_e = \frac{q_e^2}{4\pi\epsilon_0 m_e c^2} \quad 2.34$$

et en remplaçant l'accélération par son expression, l'équation 2.32 devient :

$$\mathbf{E}_s(\mathbf{R}, t) = \frac{r_e}{R} [\mathbf{e}_s \wedge (\mathbf{e}_s \wedge \mathbf{E}_i(\mathbf{r}_j, t'))] \quad 2.35$$

puis :

$$\mathbf{E}_s(\mathbf{R}, t) = \frac{r_e}{R} [\mathbf{e}_s \wedge (\mathbf{e}_s \wedge \mathbf{E}_{i0})] \exp[i(\mathbf{k}_L \times \mathbf{r}_j - \omega_L \times t')] \quad 2.36$$

La diffusion Thomson est une diffusion élastique, il y a conservation du module du vecteur d'onde :  $|\mathbf{k}_L| = |\mathbf{k}_s|$ . Le vecteur d'onde différentiel, représenté sur la *Figure 2-5*, est défini par :  $\mathbf{k} = \mathbf{k}_s - \mathbf{k}_L$  :

$$k = 2k_L \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) = \frac{4\pi}{\lambda_L} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad 2.37$$

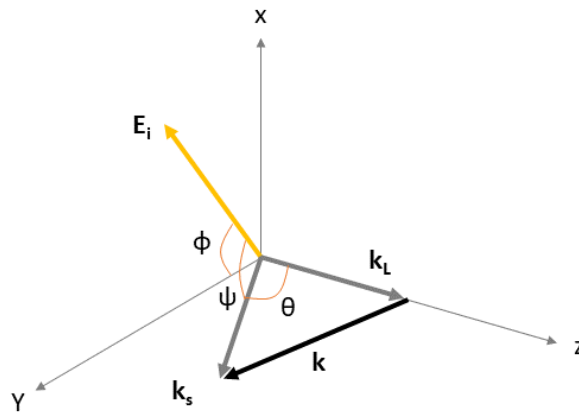


Figure 2-5 : Schéma de diffusion et vecteur d'onde différentiel.



La puissance diffusée correspond au module du vecteur de Poynting  $|\mathbf{P}_s|$  :

$$|\mathbf{P}_s| = \frac{1}{2} c \epsilon_0 \mathbf{E}_s^2 \quad 2.38$$

et la puissance diffusée par unité de surface  $dA$  à la distance  $R$  est donnée par :

$$|\mathbf{P}_s| dA = |\mathbf{P}_s| R^2 d\Omega \quad 2.39$$

La puissance diffusée par unité d'angle solide  $d\Omega$  à la distance  $R$  est donnée par :

$$\frac{d\mathbf{P}_s}{d\Omega} = R^2 |\mathbf{P}_s| = \frac{R^2}{2} c \epsilon_0 \mathbf{E}_s^2 \quad 2.40$$

$$\frac{d\mathbf{P}_s}{d\Omega} = \frac{r_e^2 c \epsilon_0}{2} [\mathbf{e}_s \wedge (\mathbf{e}_s \wedge \mathbf{E}_{i0})]^2 \quad 2.41$$

$$\frac{d\mathbf{P}_s}{d\Omega} = \frac{r_e^2 c \epsilon_0 \mathbf{E}_{i0}^2}{2} [\mathbf{e}_s \wedge (\mathbf{e}_s \wedge \mathbf{e}_i)]^2 = r_e^2 P_L [\mathbf{e}_s \wedge (\mathbf{e}_s \wedge \mathbf{e}_i)]^2 \quad 2.42$$

où  $P_L$  est la puissance du laser incident.

En introduisant la section efficace de diffusion  $\sigma_s$  et la section efficace différentielle de diffusion  $\frac{d\sigma_s}{d\Omega}$ , l'équation 2.42 devient :

$$\frac{d\mathbf{P}_s}{d\Omega} = r_e^2 P_L \sin^2 \psi = P_L \frac{d\sigma_s}{d\Omega} \quad 2.43$$

avec :

$$\frac{d\sigma_s}{d\Omega} = r_e^2 \sin^2 \psi = r_e^2 (1 - \sin^2 \theta \cos^2 \phi) \quad 2.44$$

La puissance diffusée dépend donc de l'angle  $\psi$  entre la direction de l'onde incidente et la direction de l'onde diffusée. Cette diffusion est de la forme d'un rayonnement dipolaire électrique avec un maximum à  $\psi = \frac{\pi}{2}$  et donc de forme toroïdale (cf. Figure 2-6).

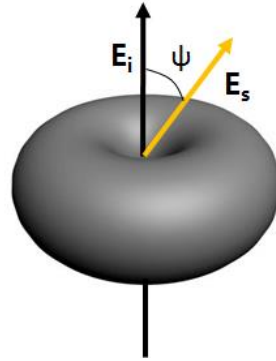


Figure 2-6 : Schéma de diffusion de type dipolaire.

Pour optimiser le signal de diffusion, la polarisation de l'onde incidente est perpendiculaire à la direction d'observation. La section efficace totale de diffusion  $\sigma_T$  est obtenue par intégration sur l'angle solide total :

$$\sigma_T = \int_{\Omega} \frac{d\sigma_s}{d\Omega} d\Omega = \frac{8\pi}{3} r_e^2 = 6,652 \times 10^{-29} \text{ m}^2 \quad 2.45$$

La faiblesse de la section efficace de diffusion d'un électron est l'un des principaux inconvénients de la diffusion Thomson. Pour détecter ce signal, il est donc nécessaire de faire des accumulations de signaux de diffusion mais aussi d'utiliser des lasers puissants, ce qui, comme nous le verrons plus tard, peut perturber le plasma.

## 2.2.2 Diffusion par N électrons

### 2.2.2.1 Expression générale

La diffusion dans un plasma par  $N$  électrons tient compte de la diffusion de chaque électron et de la distribution non uniforme de ces électrons dans l'espace. La distribution macroscopique des électrons est donnée par la relation [42] :

$$N_e(\mathbf{r}, t') = \int_V d\mathbf{r} \int d\mathbf{v} F_e(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t') \quad 2.46$$

où  $F_e(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t')$  représente la fonction de distribution de Klimontovich :

$$F_e(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t') = \sum_{j=1}^N \delta(r - r_j(t')) \delta(v - v_j(t')) \quad 2.47$$

solution de l'équation de Klimontovich suivante :

$$\frac{\partial F_e}{\partial t'} + v \frac{\partial F_e}{\partial r} + a \frac{\partial F_e}{\partial v} = 0 \quad 2.48$$

et qui donne la distribution électronique à la position  $\mathbf{r}$ , à la vitesse  $\mathbf{v}$  et à l'instant  $t'$ . La distribution macroscopique de densité électronique est donnée par :

$$n_e(\mathbf{r}, t') = \int dv F_e(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t') \quad 2.49$$

Le champ diffusé total  $E_s^T(R, t)$  est la somme des contributions des  $N$  électrons :

$$E_s^T(\mathbf{R}, t) = E_s(\mathbf{R}, t) \int_V d\mathbf{r} \int d\mathbf{v} F_e(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t') \quad 2.50$$

Le champ total diffusé est déterminé expérimentalement en utilisant un spectromètre muni d'un réseau de diffraction et d'une caméra ICCD pour mesurer l'intensité lumineuse en fonction de la fréquence. C'est pourquoi il est nécessaire de faire une transformée de Fourier du signal total diffusé pour l'exprimer en terme de fréquence :

$$E_s^T(\omega_s) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt E_s^T(t) \exp(-i\omega_s t) \quad 2.51$$

La puissance diffusée à la distance  $R$  par unité d'angle solide de diffusion  $d\Omega$  et par unité de fréquence  $d\omega_s$  s'exprime donc selon la forme [42] :

$$P_s(R, \omega_s) d\Omega d\omega_s = \frac{P_L L r_e^2}{2\pi} d\Omega d\omega_s \left(1 + \frac{2\omega}{\omega_L}\right) |\mathbf{e}_s \wedge (\mathbf{e}_s \wedge \mathbf{E}_{i0})|^2 N_e S(k, \omega) \quad 2.52$$

où  $P_L$  est la puissance du rayonnement incident (laser),  $L$  est le diamètre du volume de diffusion et  $\omega = \omega_s - \omega_L$ .  $S(k, \omega)$  est la fonction de densité spectrale aussi appelée « facteur de forme » ; elle a une composante électronique et une composante ionique, et est définie par l'équation :

$$S(k, \omega) = \frac{2\pi}{k} \left\{ \left| \frac{1 + \chi_i}{\epsilon} \right|^2 f_{e0} \left( \frac{\omega}{k} \right) + Z \left| \frac{\chi_e}{\epsilon} \right|^2 f_{i0} \left( \frac{\omega}{k} \right) \right\} \quad 2.53$$

où  $f_{e0}$  et  $f_{i0}$  sont les fonctions unidimensionnelles de distributions des vitesses des électrons et des ions respectivement.  $\chi_e$  et  $\chi_i$  sont respectivement les susceptibilités des

électrons et des ions qui définissent la permittivité diélectrique longitudinale  $\epsilon$  du plasma :

$$\epsilon = 1 + \chi_e + \sum_i \chi_i \quad 2.54$$

Nous pouvons remarquer que pour une seule ionisation :  $\epsilon = 1 + \chi_e + \chi_i$ .

D'après Fried et Conte [43], les susceptibilités  $\chi_e$  et  $\chi_i$  sont reliées à la fonction de dispersion du plasma  $W(x)$  par :

$$\chi_e(k, \omega) = \alpha^2 [R_e W(x_e) + i I_m W(x_e)] \quad 2.55$$

$$\chi_i(k, \omega) = \alpha^2 \frac{Z T_e}{T_i} [R_e W(x_i) + i I_m W(x_i)] \quad 2.56$$

avec

$$x_e = \frac{\omega}{k v_{0e}} \quad \text{et} \quad x_i = \frac{\omega}{k v_{0i}}$$

$$v_{0e,i} = \sqrt{\frac{2k_B T_{e,i}}{m_{e,i}}}$$

$R_e W(x)$  et  $I_m W(x)$  sont respectivement les parties réelle et imaginaire de la fonction de dispersion  $W(x)$ , représentées sur la *Figure 2-7* et définie par :

$$W(x) = 1 - 2x \exp(-x^2) \int_0^x \exp(p^2) dp + i \pi^{1/2} x \exp(-x^2) \quad 2.57$$

On définit le paramètre de diffusion  $\alpha$  introduit par Salpeter [44] permettant de caractériser le comportement collectif ou individuel de la diffusion Thomson :

$$\alpha = \frac{1}{k \lambda_D} \quad 2.58$$

Pour une distribution maxwellienne des vitesses (cf. paragraphe 1.3.1.1), la fonction de densité spectrale est de la forme [42] :

$$S(k, \omega) = \frac{2\sqrt{\pi}}{k v_{0e}} \left\{ \frac{Q_e}{|\epsilon|^2} + \frac{Q_i}{|\epsilon|^2} \right\} \quad 2.59$$

avec :

$$Q_e = \exp(-x_e^2) \left[ \left( 1 + \alpha^2 \frac{ZT_e}{T_i} R_e W(x_i) \right)^2 + \left( \alpha^2 \frac{ZT_e}{T_i} I_m W(x_i) \right)^2 \right] \quad 2.60$$

$$Q_i = Z \left( \frac{m_i T_e}{m_e T_i} \right)^{1/2} \exp(-x_i^2) \left[ (\alpha^2 R_e W(x_e))^2 + (\alpha^2 I_m W(x_e))^2 \right] \quad 2.61$$

$$|\epsilon|^2 = \left[ 1 + \alpha^2 \left( R_e W(x_e) + \frac{ZT_e}{T_i} R_e W(x_i) \right) \right]^2 + \left[ \alpha^2 \left( I_m W(x_e) + \frac{ZT_e}{T_i} I_m W(x_i) \right) \right]^2 \quad 2.62$$

### 2.2.2.2 Approximation de Salpeter

La fonction de densité spectrale ou facteur de forme  $S(k, \omega)$  comprend une contribution électronique et une contribution ionique qui dépendent l'une de l'autre selon l'équation 2.53. L'idée de Salpeter est de séparer les contributions électronique et ionique. En effet, étant donné que la masse des ions est largement supérieure à celle des électrons ( $m_i \gg m_e$ ) et que la température cinétique des électrons est supérieure ou égale à celle des ions ( $T_e \geq T_i$ ), nous pouvons supposer que  $\frac{x_i}{x_e} = \sqrt{\frac{m_i T_e}{m_e T_i}} \gg 1$ . Cette supposition nous permet de considérer quelques cas limites de la fonction de dispersion  $W(x)$  (cf. Figure 2-7).

- Si  $x_e \simeq 1$ , alors  $x_i \gg 1 \Rightarrow R_e W(x_i) \simeq 0$  et  $I_m W(x_i) \simeq 0$  : le facteur de forme est assimilable à la contribution électronique :

$$S_e(k, \omega) = \frac{2 \sqrt{\pi}}{k v_{0e}} \frac{\exp(-x_e^2)}{\left[ (1 + \alpha^2 R_e W(x_e))^2 + (\alpha^2 I_m W(x_e))^2 \right]} \quad 2.63$$

- Si  $x_i \simeq 1$ , alors  $x_e \ll 1 \Rightarrow R_e W(x_e) \simeq 1$  et  $I_m W(x_e) \simeq 0$  : le facteur de forme est assimilable à la contribution ionique :

$$S_i(k, \omega) = \frac{2 \sqrt{\pi}}{k v_{0i}} \frac{Z \alpha^4 \exp(-x_i^2)}{\left[ \left( 1 + \alpha^2 + \alpha^2 \frac{ZT_e}{T_i} R_e W(x_i) \right)^2 + \left( \alpha^2 \frac{ZT_e}{T_i} I_m W(x_i) \right)^2 \right]} \quad 2.64$$

Le facteur de forme complet est la somme des facteurs de forme électronique et ionique avec l'approximation de Salpeter :

$$S(k, \omega) = \frac{2\sqrt{\pi}}{k\nu_{0e}} \Gamma_{\alpha}(x_e) + \frac{2\sqrt{\pi}}{k\nu_{0i}} Z\left(\frac{\alpha^2}{1+\alpha^2}\right)^2 \Gamma_{\beta}(x_i) \quad 2.65$$

où  $\beta = \frac{ZT_e}{T_i} \frac{\alpha^2}{1+\alpha^2}$  et la fonction  $\Gamma_{\alpha}(x)$  est définie par :

$$\Gamma_{\alpha}(x) = \frac{\exp(-x^2)}{\left[ (1 + \alpha^2 R_e W(x))^2 + (\alpha^2 I_m W(x))^2 \right]} \quad 2.66$$

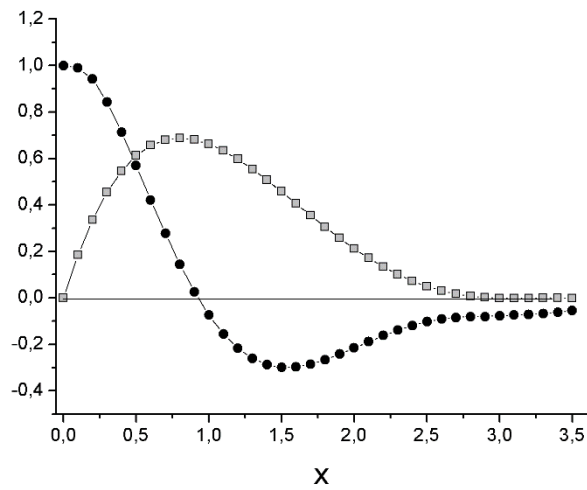


Figure 2-7 : Évolution des parties réelle et imaginaire de la fonction de dispersion  $W(x)$  ; (●)  $ReW(x)$  ; (■)  $ImW(x)$ , selon [42].

### 2.2.3 Aspect du spectre de diffusion

Dans le cas d'une onde monochromatique diffusée par un ensemble d'électrons libres, le spectre de diffusion reflète à la fois l'interaction avec les autres particules chargées et les effets d'interférences des différentes ondes diffusées par chacune des charges individuellement. L'allure du spectre de diffusion, décrite par la fonction de densité spectrale, dépend directement du paramètre de diffusion  $\alpha$  qui combine le vecteur d'onde de diffusion et la longueur de Debye (cf. *équation 2.58*).

### 2.2.3.1 Diffusion Thomson collective

La diffusion est dite « collective » lorsque l'onde électromagnétique incidente du laser sonde interagit avec un ensemble de particules chargées réparties dans un volume de la taille de la sphère de Debye de rayon  $\lambda_D$ . En d'autres termes, la diffusion est collective lorsque la longueur d'onde  $\lambda_L$  du rayonnement laser incident est supérieure à la longueur de Debye  $\lambda_D$  ou lorsque le paramètre de diffusion  $\alpha$  est supérieur à 1 :  $\lambda_L \gg \lambda_D$  ou  $\alpha \gg 1$ .

Dans ce cas, les facteurs de formes ionique et électronique se présentent respectivement sous forme de deux raies satellites symétriques par rapport à la longueur d'onde du laser sonde. La position relative de la diffusion électronique par rapport à la fréquence incidente  $\omega_L$  est donnée par la relation de Bohm et Gross :

$$\delta\omega = \omega_{pe} \sqrt{1 + \frac{3}{\alpha^2}} = \sqrt{\omega_{pe}^2 + \frac{3k^2 k_B T_e}{m_e}} \quad 2.67$$

où  $\omega_{pe}$  est la fréquence plasma électronique (cf. équation 1.3).

Les satellites électroniques deviennent de plus en plus distincts avec l'augmentation du paramètre de diffusion  $\alpha$ , c'est-à-dire avec l'augmentation de la densité électronique (cf. Figure 2-8). En général, la forme des satellites électroniques est liée à  $T_e$  alors que leur position par rapport à la fréquence du laser sonde est à la fois liée à  $T_e$  et  $N_e$ . Ainsi, les paramètres du plasma seront déterminés en approximant le spectre expérimental de diffusion par un spectre simulé sur la base de la résolution des équations décrites ci-dessus.

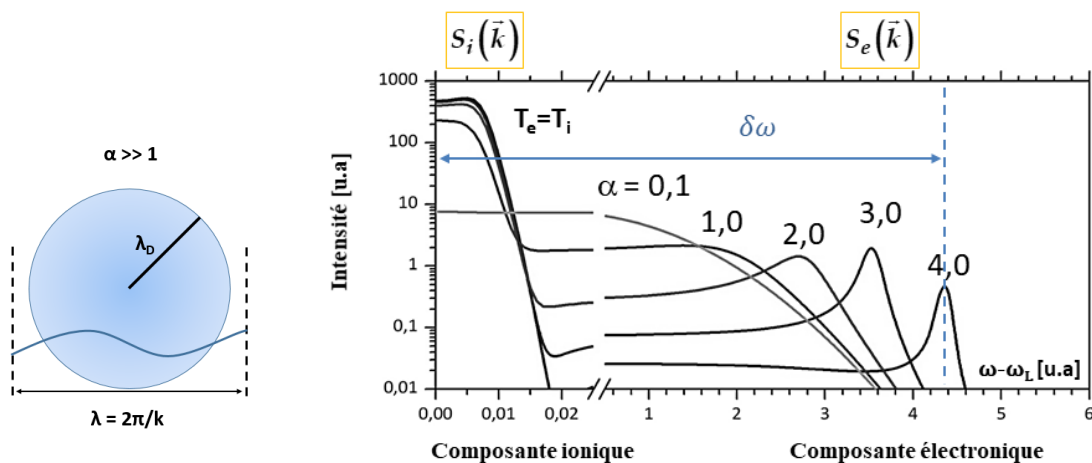


Figure 2-8 : Évolution des facteurs de forme électronique et ionique en fonction de  $\alpha$  pour une diffusion Thomson collective.

La composante ionique de la diffusion Thomson, représentée sur la *Figure 2-9*, dépend principalement de la température ionique  $T_i$ . Sa position spectrale est plus proche de la longueur d'onde du laser sonde dû à une masse plus importante des ions par rapport aux électrons. Cette composante ionique présente un profil très étroit et se superpose à la diffusion Rayleigh par les particules du milieu. Par conséquent, l'exploitation de cette composante ionique est une tâche très difficile et nécessite des systèmes optiques avec une très grande résolution spectrale.

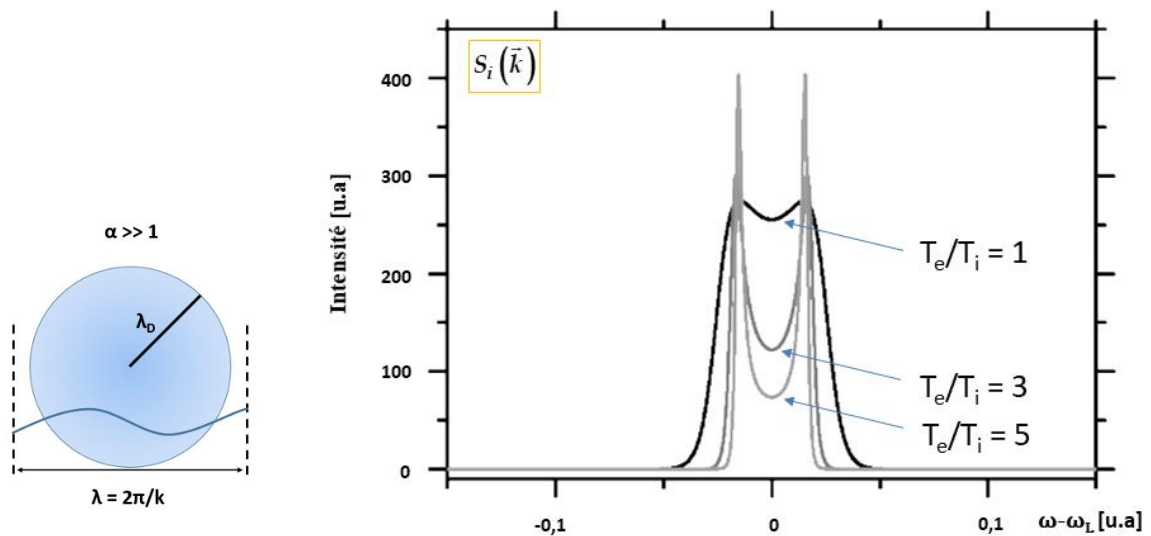


Figure 2-9 : Évolution du facteur de forme ionique en fonction de  $T_e/T_i$  pour une diffusion Thomson collective.

### 2.2.3.2 Diffusion Thomson non collective

La diffusion est « non collective » lorsque l'onde électromagnétique incidente interagit avec chaque particule chargée de façon individuelle. La longueur d'onde  $\lambda_L$  du laser incident est dans ce cas inférieure à la longueur de Debye  $\lambda_D$ . En d'autres termes, le paramètre de diffusion  $\alpha$  est inférieur à 1 :  $\lambda_L \ll \lambda_D$  ou  $\alpha \ll 1$ . Ainsi, la composante électronique est prédominante et le profil résultant est gaussien (cf. *Figure 2-10*). Lorsque l'angle d'observation  $\theta = 90^\circ$  (cf. *Figure 2-5*), la température électronique  $T_e$  est proportionnelle à la mi-largeur à  $1/e$  de la hauteur  $\Delta\lambda_{1/e}$  du profil gaussien :

$$T_e = \frac{m_e c^2}{4k_B} \left( \frac{\Delta\lambda_{1/e}}{\lambda_L} \right)^2 \quad [\text{K}] \quad 2.68$$



alors que la densité électronique  $N_e$  est proportionnelle à l'intensité totale du spectre de diffusion (cf. *Figure 2-10*). La détermination  $N_e$  nécessite une calibration de l'intensité du signal de diffusion en utilisant, par exemple, la diffusion Raman dans l'air ambiant à pression atmosphérique et à température ambiante [45].

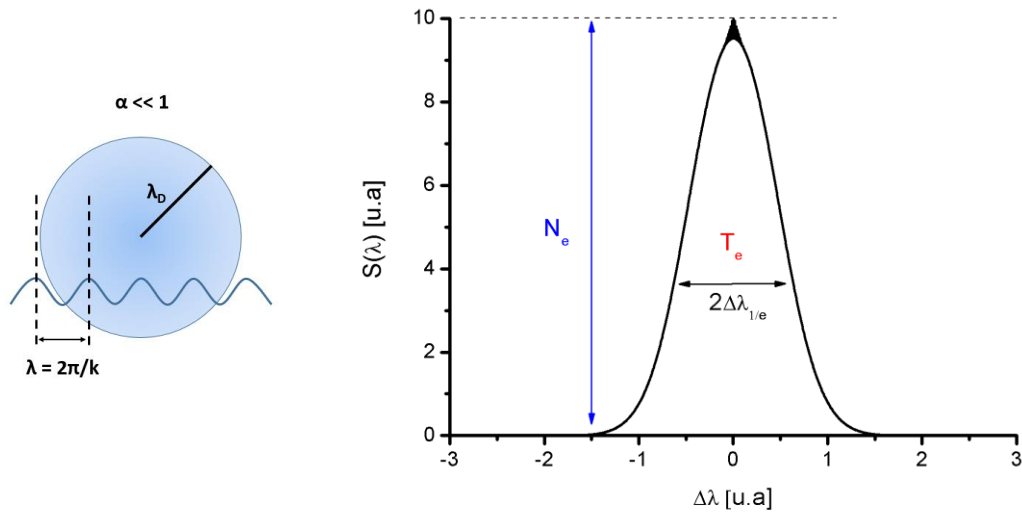


Figure 2-10 : Facteur de forme pour une diffusion Thomson non collective ;  $\alpha = 0,2$ .

### 2.2.3.3 Diffusion Thomson dans les plasmas

Le Tableau 1 donne les valeurs des paramètres de diffusion  $\alpha$  pour différents types de plasmas, en considérant la diffusion d'un laser Nd : YAG doublé ( $\lambda = 532$  nm) observée perpendiculairement à la direction du faisceau sonde : les arcs de type étincelle, et les PILs que nous étudierons ici ont des paramètres de diffusion largement supérieurs à 1, et par conséquent pourront être traités dans le cadre de la diffusion Thomson collective décrite ci-dessus.

Plasma	$N_e$ [ $m^{-3}$ ]	$T_e$ [K]	$\alpha$
Tokamak	$10^{20}$	$10^7$	0,006
Décharge lumineuse	$10^{18}$	$10^4$	0,002
Arc dans l'argon à pression atmosphérique	$10^{23}$	$10^4$	3,0
Plasma induit par laser	$10^{25}$	$10^5$	6,0

 Tableau 1 : Paramètre de diffusion  $\alpha$  évalué dans quelques plasmas typiques.

### 2.2.4 Chauffage du plasma par le laser sonde

En raison des très faibles sections efficaces de diffusion Thomson, il est nécessaire d'utiliser des lasers sondes pulsés de hautes puissances. Cependant, une puissance laser élevée peut perturber considérablement l'état du plasma selon un effet d'échauffement provoqué par l'absorption d'une partie du rayonnement du laser sonde, phénomène fonction d'une part de la composition du plasma et d'autre part de l'énergie des photons du laser sonde. Parmi les types d'absorptions possibles, nous pouvons citer l'absorption par résonance des transitions atomiques ou moléculaires, les ionisations monophotonique/multiphotonique et les processus inverses au rayonnement de freinage ou Bremsstrahlung Inverse (BI). Les deux premiers processus entraînent principalement une augmentation de la densité électronique alors que le BI provoque le chauffage des électrons libres. Cependant, lors d'une expérience de diffusion Thomson, la perturbation majeure induite par le laser sonde en régime nanoseconde reste le chauffage des électrons, qui est généralement négligeable à haute température mais doit être pris en compte pour les plasmas à basse température.

En supposant que le temps de relaxation électron-électron soit court comparé à la durée d'impulsion du laser, la limite supérieure de l'augmentation de température électronique  $T_e$  générée par le laser sonde peut être évaluée de la façon suivante [39], [46] :

$$\frac{\Delta T_e}{T_e} = \frac{2 E_L}{3 A} \frac{k_{IB}}{k_B T_e N_e} \quad 2.69$$

où  $E_L$  désigne l'énergie du laser sonde,  $A$  correspond à la section d'interaction du laser avec le plasma et  $k_{IB}$  est le coefficient d'absorption, donné par la relation suivante :

$$k_{IB} = \left(\frac{\pi}{54}\right)^{1/2} \frac{q_e^6 c}{m_e^2 \epsilon_0^3 h \omega_L^3} \left(\frac{m_e}{k_B T_e}\right)^{1/2} \times \sum_Z Z^2 N_i^{(Z)} N_e \left(1 - \exp\left(-\frac{h\omega_L}{k_B T_e}\right)\right) \bar{G}_{ff}(\omega_L) \quad 2.70$$

où  $N_i^{(Z)}$  est la densité des ions au degré d'ionisation  $Z$ ,  $\bar{G}_{ff}$  représente le facteur de Gaunt effectif pour les transitions libres-libres et  $\omega_L$  est la fréquence du laser sonde.

L'augmentation de la température dépend essentiellement des valeurs initiales des paramètres du plasma ( $T_e$  et  $N_e$ ) et de l'énergie du laser  $E_L$ . L'effet de chauffage des électrons libres est considérable pour une densité électronique initiale élevée et une température électronique initiale faible. Par exemple, les plasmas de fusion nucléaire avec généralement des températures élevées et les plasmas de décharge luminescente avec des densités électroniques faibles, peuvent être considérés comme faiblement perturbés lors d'une sonde par diffusion Thomson [46]. Nous avons expérimentalement mis en évidence l'effet du laser sonde sur les paramètres d'un plasma d'argon induit par laser à la sous-section 4.8.5 de ce manuscrit.

La technique de diffusion Thomson collective est relativement fiable et maîtrisée pour diagnostiquer des PILs. L'utilisation des lasers sondes pulsés de hautes puissances permet d'obtenir une caractérisation locale du plasma avec une grande résolution spatiale et temporelle. Cependant, le caractère intrusif de cette méthode peut induire un chauffage des électrons libres et doit être pris en compte et corrigé pour remonter aux paramètres effectifs du plasma.

# **Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE**

## **3 Étude d'un plasma de décharge par SOE**

### **3.1 Introduction**

Les plasmas de décharge constituent les premiers types de plasmas artificiels conçus grâce la découverte de l'électricité. En effet, c'est vers l'année 1800 que H. Davy fit éclater, pour la première fois, une décharge continue entre deux électrodes de carbone [10]. Ceci marqua le début de l'étude des plasmas thermiques et l'avènement de nombreuses applications. En 1844, Léon Foucault utilisa la propriété de flux radiatif intense des décharges électriques pour créer une lampe à arc. En 1880, c'est au tour de Louis Clerc d'exploiter son flux thermique élevé pour faire de la soudure à l'arc qui s'est par la suite très largement répandue. Le nombre d'applications à forts potentiels industriels n'a pas ensuite cessé de s'accroître.

Même si les connaissances établies au 20<sup>e</sup> siècle sur la physique atomique ont, entre autre, permis une meilleure connaissance des phénomènes mis en jeu lors d'une décharge électrique, le besoin de renforcer les connaissances fondamentales dans ce domaine et d'améliorer les performances industrielles ont généré de nombreuses études portant notamment sur les phénomènes aux électrodes. En effet, la décharge peut être divisée en trois parties distinctes : la zone cathodique, la zone anodique et la colonne de plasma. La durée de vie des électrodes (cathode et anode) est limitée par l'érosion provoquée par l'échauffement, la fusion et l'évaporation du métal, surtout à la cathode. Effectivement, pendant la décharge électrique, les électrons sont émis à partir de la surface de la cathode et cette dernière joue un rôle essentiel dans la formation de la décharge, au-delà des rôles joués par les trois paramètres de base que sont l'intensité du courant, la tension de décharge et la distance inter-électrodes.

### **3.2 Contexte de l'étude**

L'utilisation des décharges électriques comme sources d'allumages est très répandue dans le cadre de l'étude et de la maîtrise des risques d'allumages accidentels de matières inflammables ou explosives, sujet majeur dans les domaines de l'industrie alimentaire, pharmaceutique, cosmétique, automobile, aéronautique, métallurgique, etc. C'est en particulier le cas des nuages de poudres qui peuvent se former dès que sont mises en œuvre des matières pulvérulentes de quelques types que ce soit, et dont les dangers d'explosivité sont connus [47], [48]. L'utilisation de ces matières pulvérulentes doit respecter certaines normes de sécurité comme la directive n° 1999/92/CE [49] qui indique les prescriptions minimales visant à améliorer la protection en matière de sécurité et de santé des travailleurs susceptibles d'être exposés aux risques d'atmosphères explosives. Dans ce cadre, le développement actuel des applications utilisant des poudres métalliques que ce soit pour générer par exemple de l'énergie thermique dans les moteurs [50]–[52] ou pour la fabrication additive par laser [53]–[56], a relancé l'intérêt porté à la problématique de l'inflammation/explosion des nuages de

poudres métalliques, particulièrement énergétiques, en milieu confiné et soumis à une source d'énergie accidentelle (point chaud, flamme, électricité statique, court-circuit ou étincelle, etc.).

Dans cette partie de travail sur l'étude de milieux transitoires, nous allons étudier un plasma de décharge en régime d'arc utilisé pour allumer des matières pulvérulentes afin de déterminer leur sensibilité à l'inflammation ou à l'explosion. Dans le domaine de la combustion, la sensibilité d'une matière inflammable est évaluée en mesurant une grandeur appelée Énergie Minimale d'Inflammation (EMI), ou Minimum Ignition Energy (MIE), correspondant à la quantité d'énergie minimale nécessaire à son inflammation. L'EMI s'est révélée être une donnée probabiliste [57] et plusieurs méthodes statistiques ont été développées pour sa détermination [57], [58].

Le dispositif à décharge électrique développé au sein du laboratoire PRISME et que nous allons utiliser, permet de générer une étincelle d'énergie contrôlée et reproductible. Il a déjà permis à S. Bernard et ses collaborateurs [59], [60] de mesurer des EMIs de matières pulvérulentes telles que l'aluminium, la fécule de maïs, le lycopodium, le charbon et des alliages d'aluminium avec du silicium et du magnésium en utilisant le test statistique dit de Langlie [61]. Nous avons aussi utilisé ce dispositif et le test Langlie pour mesurer des EMIs de poudres d'aluminium, d'un alliage d'aluminium-silicium (avec 10 % de silicium) et de magnésium [62]. Le test statistique de Langlie permet de déterminer la probabilité d'inflammation d'un nuage de poudre en fonction de l'énergie d'allumage. Mais l'ensemble des phénomènes physico-chimiques qui se produisent de l'étincelle à l'explosion, reste encore à l'heure actuelle très mal connu.

Généralement, le phénomène de combustion multiphasique met en jeu un écoulement compressible, transitoire, turbulent et réactif assez complexe et les données telles que l'EMI et la température de la source d'allumage sont utilisés pour simuler des allumages en 1-dimension [63]–[65] puis en 2-dimensions [66]–[68]. Ces dernières années, des codes de calcul tels que les méthodes CFD (Computational Fluid Dynamics) ont été appliqués à la résolution de l'ensemble des équations différentielles décrivant les différents processus mis en jeu (conservation de la masse, de l'énergie, etc.) pour la simulation de combustions en 3-dimensions. Les aspects spécifiques de la première étape d'une combustion correspondent à la génération du milieu actif (nuage de poudre, mélange combustible, etc.) et au transfert d'énergie thermique qui initie les réactions chimiques. Cependant, la distribution spatio-temporelle des paramètres du plasma de décharge qui initie la combustion tels que la température et la densité électronique est mal connue. Aussi, dans les travaux de simulation de la combustion de matières pulvérulentes en 3-dimensions, les valeurs de température sont souvent choisies arbitrairement autour du point d'ébullition de la matière en question appelé « point chaud » [69], [70]. Une simulation plus réaliste nécessite une connaissance de la variation spatio-temporelle de ces paramètres qui peut éventuellement avoir une influence sur l'initiation de la combustion et la propagation des flammes.

Notre objectif principal est de fournir des valeurs réalistes de températures et de densités électroniques du plasma de décharge pouvant être utilisées comme données d'entrée des simulations numériques des explosions de poussières.

### 3.3 Évaluation des paramètres d'inflammation : EMI et délais d'allumage

Une meilleure compréhension des phénomènes d'interaction entre les poudres métalliques et l'étincelle électrique nécessite en amont la détermination de paramètres intrinsèques, tels que les énergies minimales d'inflammation et les délais d'allumage : ils ont été évalués expérimentalement dans nos conditions de travail.

#### 3.3.1 EMI : Définition et Évaluation

L'allumage par étincelle créé par de l'électricité statique, par accumulation de charges électriques sur les isolateurs électriques, ou encore par rupture de contact entre deux conducteurs, avec une courte durée (quelques microsecondes) et une tension élevée, est l'une des sources d'inflammation accidentelle les plus courantes. L'inflammation d'un nuage de poudre inflammable par un tel phénomène est complexe, en partie parce que l'efficacité de ces étincelles, en ce qui concerne l'inflammation d'atmosphères explosives, n'est pas bien connue. Les caractéristiques de telles étincelles électriques sont difficiles à quantifier et à reproduire en laboratoire, et de nombreux travaux cherchent à évaluer leur dangerosité en termes d'inflammation de poudres métalliques ou organiques, en déterminant notamment l'EMI en environnement confiné.

Une simple étincelle ne suffit pas toujours pour déclencher la combustion d'une poudre inflammable : l'énergie de la source d'inflammation doit être suffisamment élevée pour enflammer le mélange poudre/air. Comme défini dans la norme européenne EN 13821 : 2002 [71], l'Énergie Minimale d'Inflammation (EMI) est la plus petite quantité d'énergie emmagasinée dans un condensateur qui, dans des conditions spécifiques, peut enflammer un tel mélange poudre/air pour une granulométrie, une concentration massique et une richesse en oxygène données, avec une probabilité d'inflammation de 10 % : l'EMI correspond ainsi à une probabilité d'allumage de 10 % ( $EMI \approx E_{10}$ ), cf. *Figure 3-1*, extraite de [59].

Habituellement, et même si les mécanismes d'inflammation en cause peuvent être très différents, les valeurs d'EMI sont considérées comme une évaluation du risque d'inflammation électrostatique : elles sont représentatives de la sensibilité d'un échantillon de poudre à être allumé par une source électrostatique, et elles soulignent la sensibilité relative des échantillons [72]. L'EMI est donc un paramètre essentiel pour évaluer la dangerosité d'une substance combustible et permet ainsi de classer les poudres en fonction de leur inflammabilité [73].

Dans nos expériences, les EMIs de poudres métalliques sont mesurées dans un tube de Hartmann modifié (cf. sous-section suivante), selon les normes européennes [71] et internationales [74]. L'énergie de la décharge d'étincelle est corrélée à la durée de la décharge et le test de Langlie [61] est utilisé pour déterminer les probabilités d'inflammation des poudres avec des énergies d'étincelle variables (cf. exemples sur la *Figure 3-1*, extraite de [59]).

## Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

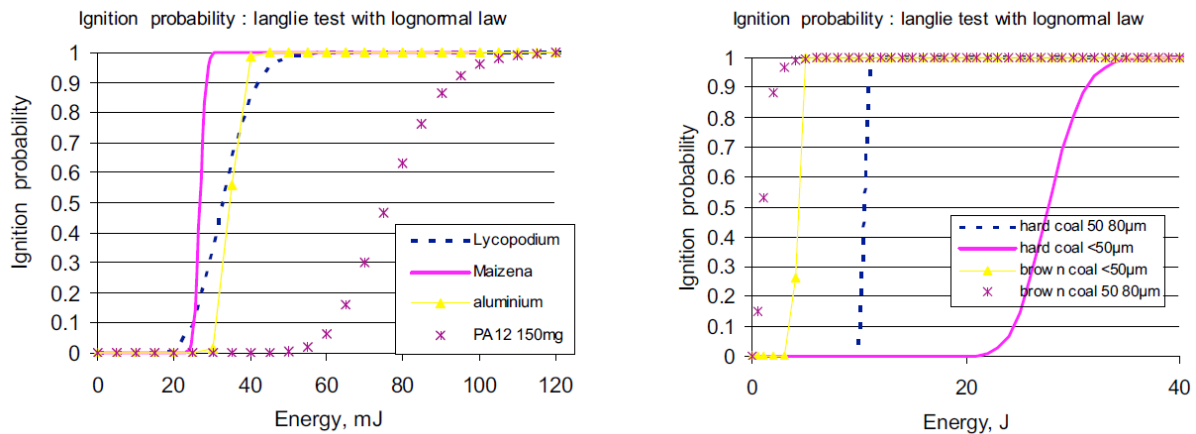


Figure 3-1 : Exemples d'EMI de quelques poudres en fonction de la probabilité d'inflammation, extraite de [59].

### 3.3.2 Tube de Hartmann modifié

Pour assurer la reproductibilité des processus d'allumage et des tests expérimentaux, les poudres métalliques étudiées sont enflammées par une décharge d'étincelle contrôlée, puis brûlées dans un tube de Hartmann modifié, dont une description complète est donnée dans [75]. Brièvement, il s'agit d'un tube cylindrique (420 mm de hauteur et 71 mm de diamètre) dans lequel deux électrodes sont fixées au tiers de sa hauteur en tant que générateur d'étincelles (cf. *Figure 3-2*, extraite de [62]). Le corps du tube de Hartmann est fabriqué en polycarbonate transparent pour permettre des observations de l'explosion, des analyses thermographiques et spectroscopiques dans la plage spectrale du visible à l'infrarouge proche. Sa base supérieure est fermée par un papier perforé (filtre) qui s'ouvre sous l'action de l'onde de pression générée lors de l'explosion. Dans cette configuration, la poudre en suspension reste semi-confinée tant que l'inflammation n'a pas eu lieu, assurant une concentration constante et quasi-homogène de l'aérosol. Son ouverture post-soufflage libère la surpression due à l'explosion et les produits de combustion sont recyclés par aspiration.



### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

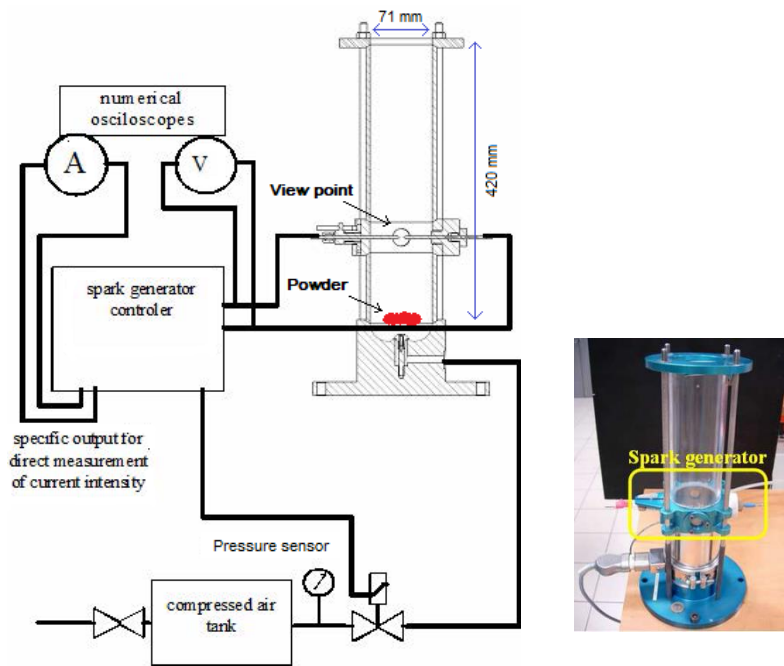


Figure 3-2 : Tube de Hartmann modifié ; Vol = 1,6 L.

L'alimentation du générateur d'étincelles (descriptif en Annexe 1, page 203) utilisé permet de modifier l'énergie déposée et de synchroniser la génération de nuages de poudres avec le début de la décharge d'étincelle. Un générateur d'air comprimé d'une surpression de 0,5 bar positionné à la base inférieure du tube Hartmann, est utilisé pour disperser la poudre métallique et créer un nuage de poudre. Cette surpression relativement basse, appliquée pendant environ 100 ms, réduit le niveau de turbulence [13] pouvant affecter les caractéristiques de l'inflammation/explosion [76].

La génération de nuages, et en particulier l'homogénéité de la dispersion des poudres, la concentration de poudre et la turbulence du nuage, sont des paramètres clés dans un tel dispositif pour assurer la reproductibilité des mesures : ceci a été obtenu en contrôlant le délai entre le déclenchement de la dispersion de la poudre et l'allumage de la décharge. En accord avec [52], ce délai a été fixé à 500 ms, pour obtenir une dispersion uniforme dans le tube de Hartmann.

L'étincelle est placée dans le nuage de poudre pour y initier une combustion relativement rapide pouvant conduire à une inflammation/explosion, avec des valeurs d'énergie  $E_{arc}$  réglables dans la plage de 0,32 mJ à 32 J avec une imprécision inférieure à 10 % (cf. description à la page 64). La propagation de la flamme du centre du point d'allumage vers la périphérie, résulte de la combustion des poudres avec l'oxygène de l'air ambiant et le rayonnement continu des particules.

Les mesures sont effectuées pendant les premiers moments de la combustion, depuis l'apparition de l'étincelle à l'inflammation des poudres et avant la rupture du filtre au sommet du tube. Ainsi, la quantité d'aérosol dans le tube reste relativement constante et n'affecte pas de manière significative les différents paramètres mesurés (températures, délais d'allumage, etc.).

Chaque essai réalisé nécessite une préparation minutieuse pour assurer la répétabilité des mesures. En particulier, les poudres déposées dans le tube de Hartmann sont préalablement stockées dans un four à une température fixe de 50 °C pour éviter la formation d'agglomérats et les variations d'humidité et la température initiale des poudres juste avant la combustion est égale à la température ambiante.

#### 3.3.3 Les EMIs de poudres métalliques Al, AlSi<sub>10</sub>Mg et Mg

Les EMIs obtenues pour des poudres d'aluminium, d'AlSi<sub>10</sub>Mg (alliage d'aluminium avec 10 % en masse de silicium et moins de 0,5 % en masse de magnésium), et de magnésium, sont présentées dans le *Tableau 2*. Leur détermination a nécessité environ vingt essais pour chacune, et les incertitudes indiquées sont dérivées de l'écart d'énergie standard du test final de Langlie. L'intérêt de ces poudres repose notamment sur leurs densités énergétiques élevées, leurs faibles coûts et leurs temps de combustion relativement courts [52]. De plus, la formation de produits de combustion intermédiaires tels que AlO pourrait permettre de déterminer des températures rotationnelles durant la combustion de poudres d'aluminium. Les valeurs d'EMI de la poudre d'Al obtenues sont comparables à celles de S. Bernard et al. [59], R. Lomba [52] ou A. Janes et al. [72] pour différentes tailles et concentrations, et celles d'AlSi<sub>10</sub>Mg mesurées par Bernard et al. [60] se situent dans la plage de 11-14 mJ pour des poudres sphériques d'un diamètre moyen de 19,7 µm environ, d'une teneur en oxyde d'environ 7 à 8 % et d'une concentration en poudres d'environ 350 mg.L<sup>-1</sup>.

Alors que pour les poudres de magnésium et d'AlSi<sub>10</sub>Mg, les valeurs d'EMI obtenues pour différentes tailles de particules sont très proches, le diamètre moyen des particules d'aluminium a un impact plus important sur cette énergie. Selon R. Lomba [52], ce serait lié à la distribution en taille des poudres qui est relativement fine dans le cas de l'Al et plus irrégulière avec des distributions en taille plus grandes pour les particules de Mg et d'alliage AlSi<sub>10</sub>Mg. Dans ces conditions, la partie non négligeable des petites particules d'Al pourrait avoir une influence significative sur la sensibilité d'allumage des poudres en raison de leur plus grande réactivité.

À des diamètres presque équivalents, les poudres de magnésium sont beaucoup plus sensibles à l'inflammation que les poudres d'aluminium. Ces dernières sont généralement entourées d'une couche d'oxyde d'aluminium (températures de fusion et d'ébullition, respectivement de  $T_m = 2345$  K et  $T_b = 3250$  K) qui se forme au contact de l'air dès sa fabrication. Cet oxyde inerte est responsable de la passivation de la particule et le processus d'inflammation est directement lié à la fusion/rupture de cette couche d'oxyde [52], [60].

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

L'oxydation des poudres d'alliage  $\text{AlSi}_{10}\text{Mg}$ , ainsi que la proportion de silicium dans l'alliage, contribuent à l'obtention d'une EMI relativement plus élevée que pour les autres échantillons [60].

Il faut noter que les poudres métalliques ne sont pas inflammables à des concentrations de poudre très élevées ou très basses. Par exemple, pour une énergie de 16 mJ et une taille de particules de poudre comprise entre 25 et 30  $\mu\text{m}$  : en-dessous de 200  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  et au-dessus de 1400  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , l'EMI devient presque infinie et le mélange poudre-air est difficile à enflammer.

Type of powder	Diameter $\varnothing$ [ $\mu\text{m}$ ]	Concentration C [ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ]	MIE $E_{10}$ [mJ]	Ref.
Al	6.0	260	6.70 $\pm 0.01$	[62]*
Al	7.1	320	6.1	[52]
Al	11.7	320	14	[52]
Al	17.9	320	21	[52]
Al	25.3	300	18.99 $\pm 0.02$	[62]*
$\text{AlSi}_{10}\text{Mg}$	15-25	270	15.13 $\pm 0.02$	[62]*
$\text{AlSi}_{10}\text{Mg}$	25-30	270	12.23 $\pm 0.01$	[62]*
$\text{AlSi}_{10}\text{Mg}$	30-50	270	14.01 $\pm 0.02$	[62]*
$\text{AlSi}_{10}\text{Mg}$	19.7	350	14	[60]
Mg	23.5	590	3.6	[52]
Mg	38.3	590	4.1	[52]

Tableau 2 : MIE  $E_{10}$  de différentes poudres métalliques.

[\* publication issue de nos résultats].

#### 3.3.4 Délais d'allumage

Pour étudier l'interaction entre l'étincelle et la poudre en suspension, le délai d'allumage est un paramètre intéressant à déterminer. Ce délai dépend de la taille des particules [77], du rapport oxydant/combustible [26] et de l'énergie d'inflammation mais aussi de la puissance lors de la mise à feu. En particulier, c'est durant cet intervalle de temps que se développent tous les processus chimiques pouvant aboutir à une inflammation.

L'évaluation du délai d'allumage est possible en utilisant un pyromètre dichromatique (cf. sous-section 3.11.1, page 89), équipé d'un photodétecteur rapide en silicium, d'une sensibilité maximale à 850 nm, et d'un filtre interférentiel centré à 750 nm (pour limiter les rayonnements parasites, puisqu'aucun rayonnement spectral n'est

présent à ces longueurs d'onde [78]). Ce pyromètre placé à l'extérieur du tube de Hartmann au niveau de l'étincelle, permet d'évaluer ce délai d'allumage pour différentes conditions de mesure (cf. Figure 3-3, extraite de [62]). On peut alors distinguer chronologiquement le signal de déclenchement initial correspondant à la formation du nuage de poudre, le signal d'allumage par l'étincelle et deux pics liés au développement de la flamme : le « pic 1 » correspond à l'émission de la flamme de combustion, tandis que le « pic 2 » résulte de la « réflexion » de cette flamme sur la partie supérieure du tube Hartmann.

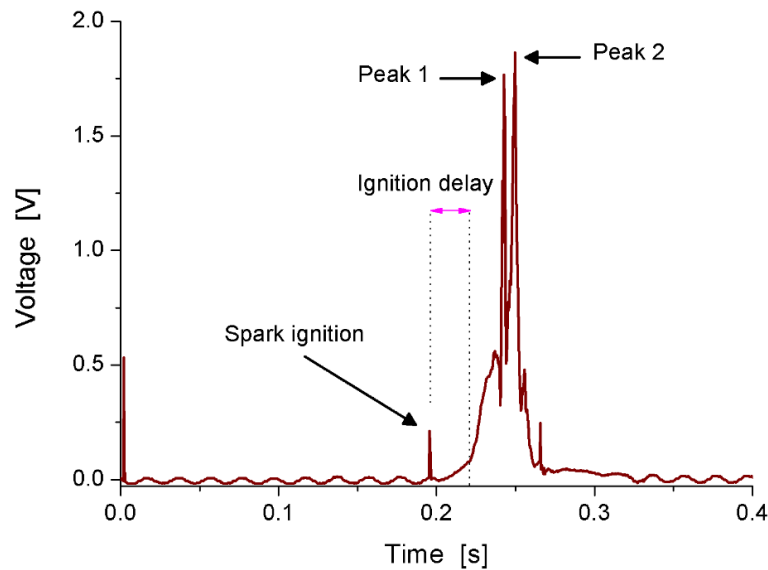


Figure 3-3 : Signal sur le photodétecteur rapide, à 750 nm, pour la combustion de poudre d'aluminium ;  $c = 1 \text{ g.L}^{-1}$  ;  $E_{arc} = 16 \text{ mJ}$ , extraite de [62].

Les délais d'allumage sont définis ici comme les délais entre le signal de l'étincelle et  $1/10$  du maximum d'émission de la flamme. Ils sont présentés sur la Figure 3-4, extraite de [62], en fonction des concentrations initiales des différentes poudres métalliques (Al, AlSi<sub>10</sub>Mg, Mg). Les barres d'incertitude correspondent essentiellement aux écart-types des séries de mesures réalisées. Les délais d'allumage passent tous par un minimum à environ  $15 \mu\text{s}$  pour des concentrations de poudre métallique comprises entre  $600$  et  $1000 \text{ mg.L}^{-1}$ . Cette valeur est similaire à celle de  $17 \mu\text{s}$  obtenues par S. Bernard et P. Gillard pour des concentrations de poudres d'aluminium comprises entre  $700$  et  $1200 \text{ mg.L}^{-1}$  [78].

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

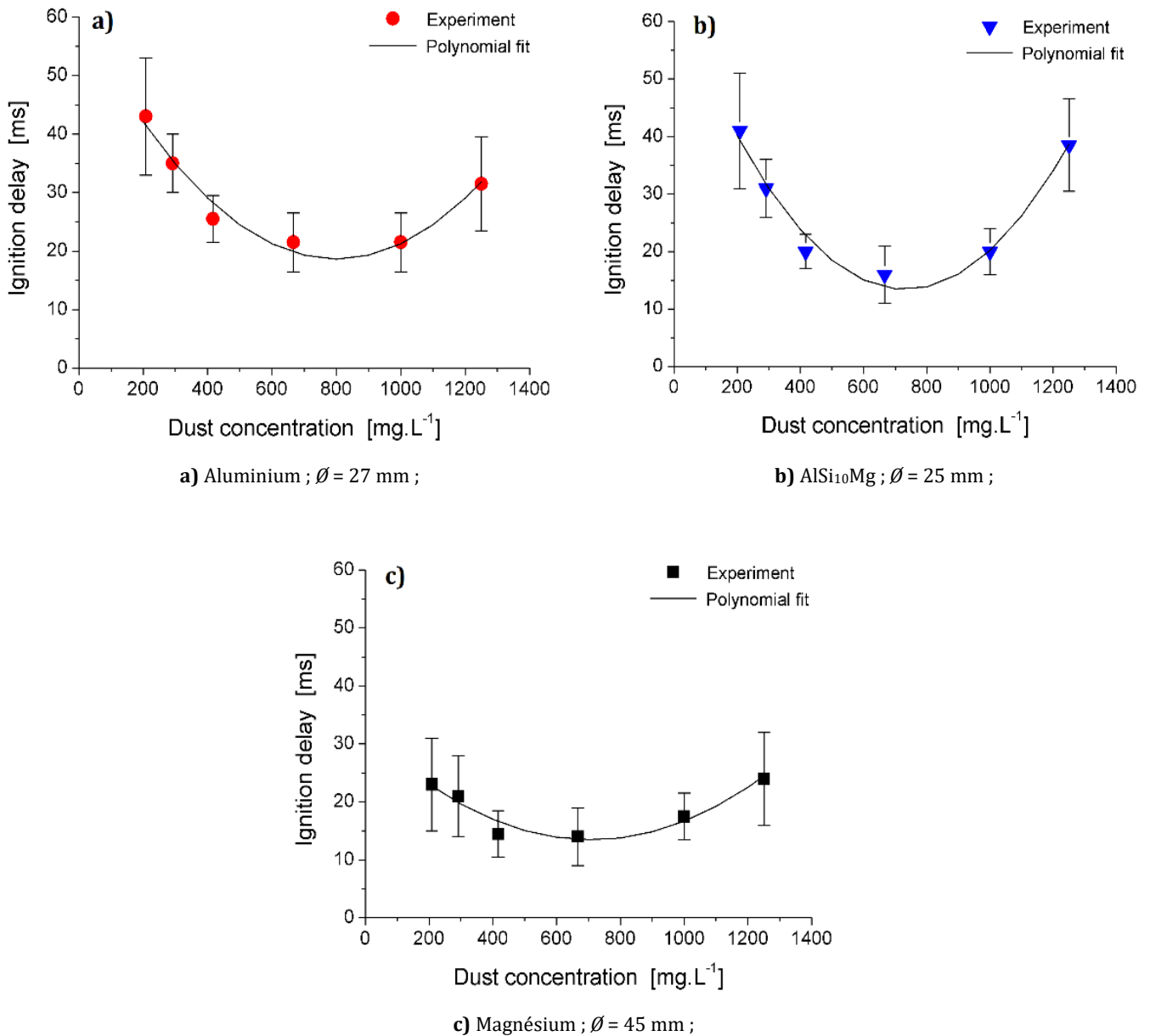


Figure 3-4 : Délais d'allumage pour différentes poudres métalliques ;  $E_{arc} = 16$  mJ, extraite de [62].

À l'échelle des réactions chimiques, l'existence d'un délai d'allumage minimal est directement liée à la vitesse de la flamme laminaire qui atteint une valeur maximale lorsque le délai d'allumage est minimal. En effet, il existe une vitesse de flamme laminaire maximale pour les gaz combustibles dans des rapports proches de la stœchiométrie compris entre 1 et 1,2 dans l'air [81] où la vitesse de réaction est maximale, *i.e.* où le délai d'allumage est minimal.

La variation de l'énergie de l'étincelle, qui modifie le volume et la distribution de la température de l'interaction poudre/étincelle, modifierait le délai d'allumage relatif, mais

pas la position du délai d'allumage minimal par rapport à la concentration en poudre, pour un rapport oxydant/combustible donné. Pour valider cette hypothèse, des expériences supplémentaires doivent être effectuées, faisant varier à la fois la concentration en poudre et l'énergie d'allumage. À l'échelle macroscopique, la densité de poudre en interaction avec la source d'inflammation joue donc un rôle dans la propagation de la flamme pour un rapport oxydant/combustible fixe. À faible concentration en poudre, l'augmentation du délai d'allumage peut s'expliquer par la faible quantité de particules en combustion qui ralentit le transfert de chaleur vers les particules environnantes. À forte concentration de poudre, l'augmentation du délai d'allumage s'explique par la dissipation de la chaleur vers les nombreuses particules froides, ce qui ralentit la combustion et la propagation de la flamme.

Dans tous les cas, l'étincelle électrique interagit avec le matériau pendant une durée de quelques millisecondes au cours de laquelle tous les processus liés au transfert d'énergie de l'étincelle au produit inflammable ont lieu. Les phénomènes qui se développent au cours de ce court instant sont difficiles à appréhender [76], [82], [83] et il n'existe que peu d'ouvrages sur le sujet.

### 3.3.5 Vitesse de flamme

Nous pouvons aussi profiter de ce signal pour évaluer la vitesse de la flamme à partir de ces deux pics, connaissant les dimensions du tube de Hartmann. La vitesse de flamme ainsi mesurée est d'environ  $56 \text{ m.s}^{-1}$  : elle dépend de l'énergie d'allumage de l'étincelle, de la taille des particules de poudre, de la concentration en poudres, mais également de la position de l'étincelle dans le tube de Hartmann. Cette valeur globale évaluée ici est en réalité supérieure aux mesures effectuées par S. Hosseinzadeh et al. (vitesse de flamme maximale du zirconium de  $10$  à  $14 \text{ m.s}^{-1}$ , selon les conditions expérimentales) [79]. Néanmoins, ces résultats ne sont pas directement comparables, d'autant plus que les mesures de S. Hosseinzadeh et al. ont été effectuées uniquement pendant les premiers instants d'inflammation des nuages de poudre. En effet, Y. Yin et al. [80], qui donnaient des vitesses de flamme jusqu'à  $35 \text{ m.s}^{-1}$  en fonction de la concentration en zirconium, ont montré que la vitesse de propagation de la zone de combustion n'était pas constante dans le temps : après une courte phase constante, celle-ci subissait une légère accélération suivie par une légère décélération due à l'influence de la paroi de la chambre, puis un processus d'accélération se produit, suivie d'une nouvelle diminution.

### 3.3.6 En guise de conclusion

La décharge d'étincelle utilisée pour allumer les poudres est un arc électrique formé entre deux électrodes : son étude spectroscopique permettra de déterminer la répartition de sa température lors de l'allumage du nuage de poudre afin de mieux comprendre, à termes, les phénomènes qui se produisent pendant le délai d'allumage. En raison de la difficulté à effectuer son étude dans le tube Hartmann en présence de poudres

métalliques, l'étude se fera dans l'air à la pression atmosphérique qui est néanmoins l'atmosphère environnant les particules avant leur combustion.

### 3.4 Décharge à courant continu

Une décharge électrique est provoquée par un transfert d'énergie électrique entre deux électrodes séparées par un milieu électriquement isolant (gazeux ou vide). Le claquage électrique est matérialisé par le passage des électrons à travers le milieu isolant qui devient alors conducteur, ionisé et émetteur de lumière. Sous l'effet du champ électrique, les électrons sont accélérés et transférés de la cathode vers l'anode. En fonction des paramètres électriques (intensité du courant  $I$  et tension  $U$ ), il existe différentes catégories de décharge à courant continu représentés schématiquement sur la *Figure 3-5*, issue de [84] :

- La « décharge sombre » est constituée : d'une décharge non autonome sans multiplication des électrons appelés charge d'espace et préalablement fournis par une émission cathodique (I), de la décharge non autonome avec multiplication d'électrons par ionisations collisionnels (II) et de la décharge dite de Townsend (III) potentiellement autonome même en l'absence d'émission cathodique.
- La « décharge luminescente » est constituée : d'une décharge dite subnormale (IV), d'une décharge dite normale (V) et d'une décharge dite anormale (VI).
- La « décharge d'arc » est composée d'une zone de transition (VII) suivie par le régime d'arc (VIII) caractérisé par une émission thermoélectronique intense, par l'apparition d'un point lumineux appelé « spot cathodique » et par une forme de la colonne plus ou moins courbée, ce qui est notamment à l'origine de l'appellation « arc ». La décharge électrique que nous allons étudier fonctionne en régime d'arc.

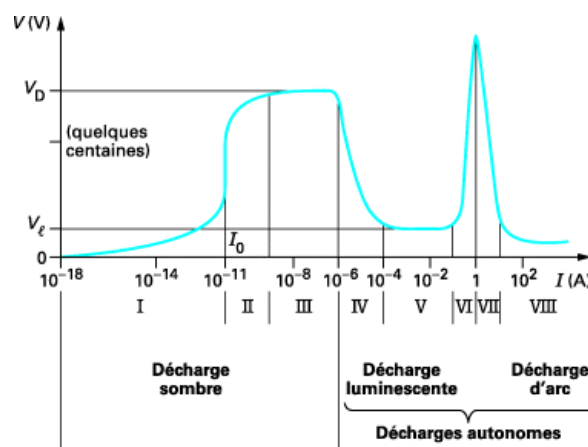


Figure 3-5 : Caractéristique courant ( $I$ ) - tension ( $V$ ) et différents régimes de la décharge à courant continu ;  $V_D$  : potentiel disruptif ;  $V_E$  : potentiel d'entretien, extraite de [84].

### 3.4.1 Structure d'une décharge d'arc

Le plasma de décharge proprement dit est relié aux électrodes par différentes gaines structurées autour de celles-ci. Cette description, schématisée par la *Figure 3-6*, est largement admise par la communauté scientifique mais reste cependant théorique et invérifiable expérimentalement du fait de la taille des gaines théoriquement de l'ordre du micromètre.

En général, les électrons sont émis à partir du spot cathodique et forment la « charge d'espace ionique » dont la taille est de l'ordre de la longueur de Debye et où il existe un champ électrique très intense ( $10^8$  à  $10^9$  V.m<sup>-1</sup>) accélérant les électrons et induisant une baisse de tension électrique à la cathode appelée « chute cathodique ». Ensuite, ces électrons accélérés ionisent les atomes présents dans la « zone cathodique ou zone d'ionisation ». L'ionisation continue au sein du plasma de la colonne évoluant spatialement et caractérisé par ses conductivités thermique et électrique. Entre le plasma de la colonne et le spot anodique qui collecte les électrons se forment la « zone anodique » et la « charge d'espace électronique » due à l'accumulation d'électrons à l'anode. D'après Vacquié [10], dans un arc au mercure à pression atmosphérique pour une température du gaz de  $10^4$  K, la largeur de la charge d'espace ionique est de  $0,01$   $\mu\text{m}$  et celle de la charge d'espace électronique de  $0,2$   $\mu\text{m}$ . Par ailleurs, les tailles des zones cathodiques et anodiques sont de l'ordre du micromètre tandis que la colonne du plasma est souvent de quelques centimètres.

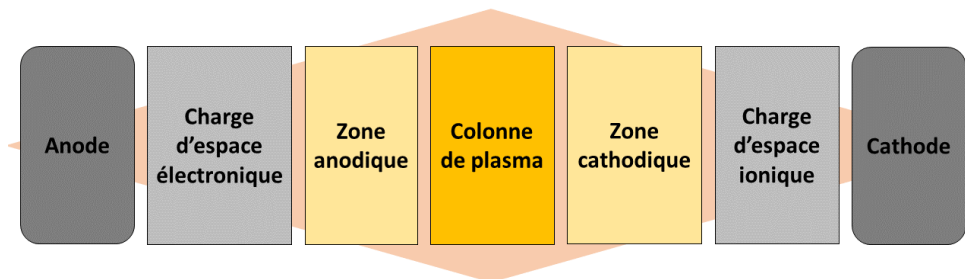


Figure 3-6 : Schéma de la structure de la décharge.

### 3.4.2 Mécanismes d'émission à la cathode

Les électrons sont émis à partir du spot cathodique selon deux modes d'émission distincts : l'émission thermoélectronique et l'émission par effet de champ.

- L'émission thermoélectronique est due à la température de la surface métallique qui permet aux électrons de gagner suffisamment d'énergie pour quitter le métal. La



densité du courant électronique  $J_{RD}$  est donnée par la formule de Richardson-Dushman :

$$J_{RD} = \frac{4\pi k_B^2 q_e m_e T^2}{h^3} \exp\left(-\frac{\Phi}{k_B T}\right) \quad 3.1$$

où  $T$  est la température de surface du métal et  $\Phi$  est le travail de sortie des électrons. Les paramètres  $h$ ,  $k_B$ ,  $m_e$  et  $q_e$  sont respectivement la constante de Planck, la constante de Boltzmann, la masse de l'électron et sa charge électrique. La présence de charges électriques positives et d'un champ électrique  $E$  perpendiculaire à la surface du métal réduit le travail de sortie des électrons : c'est le terme de correction de Schottky :

$$J_{RDS} = \frac{4\pi k_B^2 q_e m_e T^2}{h^3} \exp\left(-\frac{\Phi - \Phi_S}{k_B T}\right) \quad 3.2$$

où  $\Phi_S = \sqrt{\frac{q_e^3 E}{4\pi\epsilon_0}}$  est la correction de Schottky. Pour des matériaux avec un point de fusion élevé comme le tungstène, la formule de Richardson-Dushman donne une valeur réaliste de la densité de courant. Cependant, cette relation n'est plus valable lorsque le champ électrique  $E$  augmente [10].

- La théorie de l'émission par effet de champ a été initiée par le travail de Fowler et Nordheim [85]. Celle-ci s'appuie sur le modèle de l'électron libre proposé par Sommerfeld [86]. En effet, lorsqu'une surface métallique est soumise à un champ électrique supérieur à  $10^9 \text{ V.m}^{-1}$ , la barrière de potentiel vue par les électrons se réduit et ces derniers peuvent quitter le métal par effet tunnel.

La densité de courant électronique  $J_{FN}$  est donnée, dans le cas d'une surface métallique plane à température modérée (typiquement  $< 5000 \text{ K}$ ), par la relation de Fowler-Nordheim [85], [87] :

$$J_{FN} = \frac{q_e^3 E^2}{8\pi h \Phi} \exp\left(-\frac{8\pi\sqrt{2m_e}\Phi^3}{3q_e h E}\right) \quad 3.3$$

où  $E$  est le champ électrique [ $\text{V.m}^{-1}$ ] et  $\Phi$  le travail de sortie des électrons [ $\text{eV}$ ]. Cette émission est possible même si la température de surface du métal est faible, c'est la raison pour laquelle cette émission électronique est dite émission froide par opposition à l'émission thermoélectronique dite chaude.

Il faut noter que cette formulation ne donne pas de bons résultats pour des faibles températures et des champs électriques élevés, et qu'elle doit être prise avec précaution lors de l'existence d'effets de pointe.

Dans les décharges électriques en régime d'arc, l'émission thermoélectronique prédomine. Cependant, la présence de champs électriques importants lors des décharges implique une prise en compte aussi de l'émission par effet de champ [88].

Les nombreuses études théoriques et expérimentales sur les arcs électriques portent généralement sur le phénomène des électrodes afin d'améliorer les performances d'émission d'électrons cathodiques et sa résistance à l'érosion [89]–[91]. Toutefois, dans le cadre d'une application à l'inflammation de matériaux combustibles, le plasma de décharge devient le principal centre d'intérêt, qu'il s'agisse principalement d'une émission thermoélectronique ou d'une émission par effet de champ.

### 3.5 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé pour étudier la décharge électrique produite dans l'air, par spectroscopie optique d'émission est représenté sur la *Figure 3-7* et la *Figure 3-8* [92]. Celui-ci est composé d'un générateur haute tension relié à un oscilloscope pour la visualisation des paramètres électriques de la décharge notamment, de deux électrodes de tungstène en configuration pointe-pointe, de deux lentilles de focalisation de focales respectives 20 cm et 40 cm, d'un miroir plan, d'un spectromètre et d'une caméra ICCD.

La décharge est placée sur un support de translation horizontale et équipé de moteurs pas-à-pas, pour permettre l'étude de ses différentes régions qui sont la cathode (K), la colonne (C) et l'anode (A). L'alignement optique est fait par laser et la mise au point se fait en formant l'image de la pointe d'une des électrodes (avec un grandissement linéaire de 2, imposé par les deux lentilles) sur la fente d'entrée du spectromètre, et contrôlé par imagerie ICCD en sortie du spectromètre fonctionnant en mode 'miroir' (ordre 0 de diffraction).

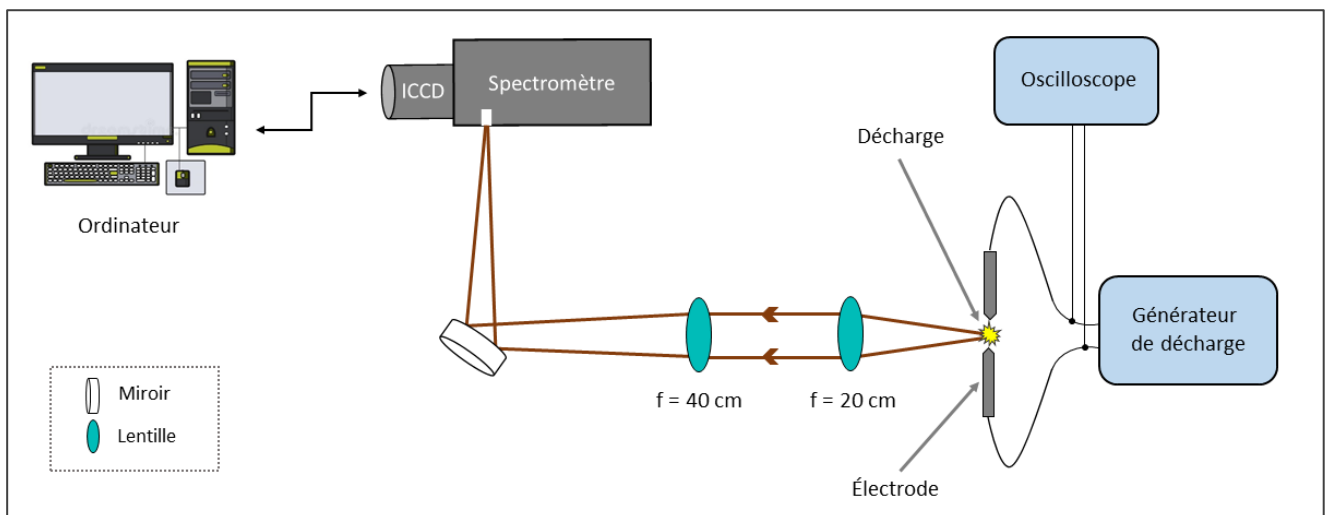


Figure 3-7 : Dispositif expérimental du plasma de décharge.

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

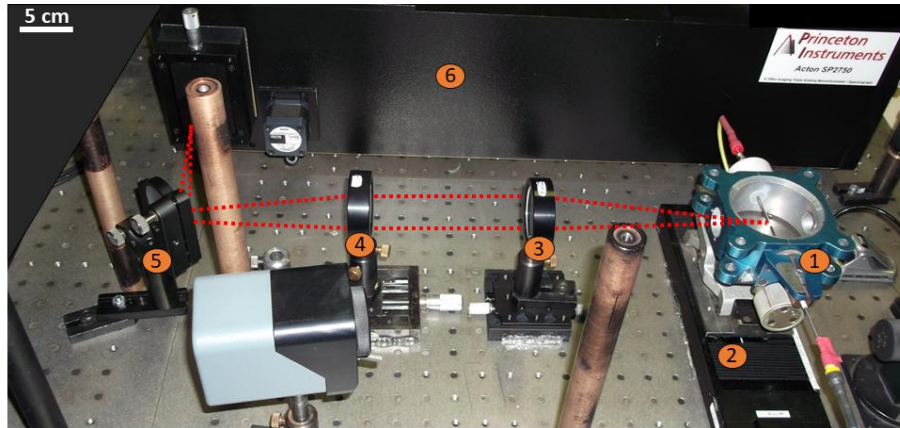


Figure 3-8 : Photo du dispositif expérimental.

- (1) plateforme de décharge avec les électrodes ; (2) support de translation ; (3) et (4) lentilles de focalisation ; (5) miroir ; (6) spectromètre équipé de la camera ICCD.

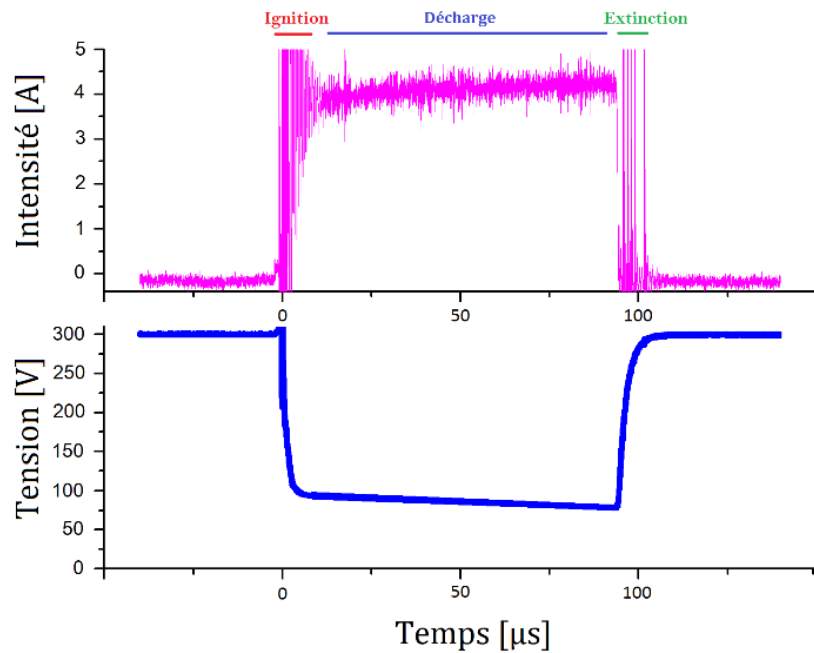
#### 3.5.1 Le générateur de décharge

Le générateur de décharge (dont les caractéristiques techniques sont détaillées en Annexe 1, page 203) est une alimentation de puissance qui délivre d'abord une impulsion haute tension de  $2 \times 10^4 \text{ V}$  initiant la décharge électrique entre les électrodes, immédiatement suivie d'une impulsion électrique de tension plus faible et constante permettant de maintenir l'arc généré pendant une durée  $\tau_{arc}$  réglable. Dans nos conditions expérimentales, le courant de décharge  $I_{arc}$  est fixé à 4 A, la distance entre les électrodes  $d_{elec}$  est égale à  $4 \times 10^{-3} \text{ m}$  et la tension de décharge  $U_{arc}$  est égale à environ 80 V (cf. Figure 3-9). Une fois ces paramètres fixés, l'énergie électrique déposée  $E_{arc}$  est alors proportionnelle à la durée de la décharge :

$$E_{arc} = U_{arc} \times I_{arc} \times \tau_{arc} \quad 3.4$$

Le générateur de décharge est aussi équipé d'une commande de déclenchement par bouton-poussoir qui lui est relié par un câble de longueur 3 mètres, et chaque tir correspond à la génération d'une seule décharge. Nous avons alors développé et ajouté à ce dispositif un générateur d'impulsions de 5 V fonctionnant à une fréquence de 1 Hz et permettant de générer automatiquement une série de décharges afin de faciliter l'accumulation de spectres pendant les mesures spectroscopiques.

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE



#### 3.5.2 Les électrodes utilisées

Nous utilisons des électrodes cylindriques de diamètre 2,4 mm dont les extrémités sont coniques avec un angle d'environ  $40^\circ$  au sommet du cône. Ce sont des électrodes en tungstène dopées au cérium. Le tungstène est un matériau réfractaire largement utilisé dans la fabrication d'électrodes du fait de son haut point de fusion (3695 K) qui réduit les phénomènes d'érosion tout en ayant une forte capacité d'émission thermoélectronique. Nous avons remarqué des traces d'érosions à la cathode, et d'après Casado et al. [89], le taux d'érosion est maximal pour une intensité du courant de 80 A, pour des électrodes de ce type. Le cérium, quant à lui, permet de réduire le travail de sortie des électrons et donc de favoriser l'émission thermoélectronique [93]–[95]. Le cérium ou le lanthane sont des dopants de substitution au thorium auparavant utilisé mais qui présentait un risque majeur à cause de son potentiel radioactif [96].

Une analyse de la cathode par MEB (Microscopie Électronique à Balayage) et par ADE (Analyse Dispersive en Énergie) montre qualitativement la présence d'autres éléments d'impureté tels que le carbone, le calcium et l'oxygène (cf. *Tableau 3*).

L'image au MEB de la cathode met en évidence une forte érosion de sa pointe qui est par ailleurs plus sombre que le reste de l'électrode (cf. *Figure 3-10*). L'assombrissement d'une partie de la pointe est probablement dû à une diminution du taux de cérium. Un tel phénomène a déjà été observé par Ushio et al. [97] et Sillero et al. [90] qui ont mis en évidence l'existence entre autre de 3 zones caractéristiques sur la

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

pointe d'une électrode de tungstène dopée au thorium : une zone de forte érosion, une zone lisse dépourvue de dopant et une zone rugueuse riche en dopant. Il faut noter que les rayures observées en surface de l'électrode sont uniquement dues au papier de verre servant au nettoyage préalable des électrodes entre deux décharges, nécessaire pour réduire la couche d'oxydes et ainsi améliorer la reproductibilité spatiale des décharges.

Élément	% Masse	% Atome
Carbone (C)	9,64	45,40
Oxygène (O)	8,19	28,97
Calcium (Ca)	0,19	0,27
Cérium (Ce)	1,40	0,57
Tungstène (W)	80,57	24,79

Tableau 3 : Composition locale de la cathode par ADE.

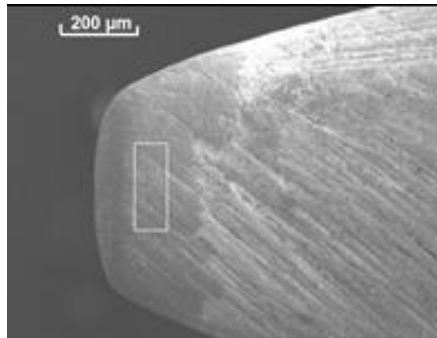


Figure 3-10 : Aspect de la pointe de la cathode par MEB.

#### 3.5.3 Le spectromètre

Le spectromètre à champ plan Acton SpectraPro 2750 de Princeton Instruments, utilisé pour l'ensemble des acquisitions spectrales, est un spectromètre de type Czerny-Turner ayant une distance focale de 750 mm. Ce spectromètre dispose d'une fente d'entrée  $e_{spect}$  réglable jusqu'à 3 mm de largeur grâce à une vis micrométrique (précision de 10 µm), la hauteur de fente étant fixe à 14 mm. Il dispose également d'un miroir plan, de deux miroirs paraboliques et de trois réseaux de diffraction montés sur une tourelle et interchangeables par rotation de celle-ci. Ces différents réseaux de diffraction, dont les

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

caractéristiques sont représentées dans le *Tableau 4*, permettent de visualiser une large gamme spectrale avec peu de résolution ou de visualiser une gamme spectrale réduite avec une plus forte résolution. Les deux premiers réseaux offrent un bon compromis entre la gamme spectrale observable et la résolution spectrale : ce sont ceux qui ont été les plus utilisés lors des expérimentations car la plupart des raies étudiées apparaissent dans le visible.

N° du réseau	1	2	3
Nb de trait [traits.mm <sup>-1</sup> ]	1200	2400	3600
Blazé à [nm]	300	240	300
Résolution [nm]	0,022	0,012	0,008
Dispersion à 435,8 nm [nm.mm <sup>-1</sup> ]	1,1	0,4	0,31
Gamme spectrale couverte [nm]	200 - 850	200 - 550	200 - 400

Tableau 4 : Caractéristiques des réseaux de diffraction.

#### 3.5.4 La caméra ICCD

Le détecteur ou capteur utilisé pour la collection des rayonnements est une caméra ICCD (Intensified Charge-Coupled Device), modèle PI-MAX 2 de Princeton Instrument disposant d'un détecteur CCD de matrice 512×512 pixels<sup>2</sup> avec un pas de 1 pixel équivalant à 19 µm. La caméra est équipée d'un intensificateur dont le gain  $G_0$  est ajustable selon les besoins de l'expérience. Cette caméra est positionnée au point focal image du spectromètre pour ne pas perdre en résolution spectrale. La caméra ICCD est équipée d'un générateur de délai programmable (PTG) permettant un contrôle de ce détecteur. Il est possible notamment de sélectionner le délai d'ouverture  $t_{gd}$  de la caméra (gate delay) par rapport à un signal de déclenchement et de régler le temps  $t_{exp}$  d'ouverture d'acquisition (gate width). L'utilisation du PTG permet donc de pouvoir effectuer une sélection temporelle des signaux que l'on collecte avec la caméra.

Cette caméra peut être déclenchée de façon interne jusqu'à une fréquence de 100 Hz (shutter mode) et de façon externe par le générateur d'impulsions à 10 Hz (gate mode). Le délai  $t_{gd}$  au bout duquel se fait l'acquisition après le déclenchement (gate delay) est réglable avec une limite inférieure de 27 ns, et la durée  $t_{exp}$  d'ouverture de l'intensificateur (gate width) correspondant au temps d'exposition, est ajustable à partir de 1 ns jusqu'à plusieurs millisecondes avec une résolution de 1 ns. Des accumulations de  $N_{acc}$  spectres de façon répétitive ou séquentielle peuvent se faire directement sur la matrice CCD et/ou dans la mémoire de la caméra. La visualisation des spectres et leur

prétraitement se fait avec le logiciel [Winspec/32](#), notamment pour la soustraction du bruit de fond.

Des lampes spectrales basse pression ( $A_r$ ,  $H_g$ ,  $K_r$ ,  $N_e$  et  $X_e$ ) sont utilisées pour étalonner précisément le dispositif en longueur d'onde, mais également pour en déterminer la fonction d'appareil (cf. paragraphe 2.1.4.4, page 29).

L'ensemble spectromètre/ICCD permet également de réaliser de l'imagerie rapide du plasma sans aucune modification du chemin optique, en ouvrant en entier la fente d'entrée du spectromètre et en travaillant à l'ordre 0 du réseau (mode « miroir »), tout en bénéficiant de la grande sensibilité de la caméra intensifiée et de sa capacité à réaliser des acquisitions sur des temps très courts (jusqu'à quelques ns !).

#### 3.5.5 Correction du gain de la caméra

Les caméras intensifiées sont largement utilisées en imagerie ou en spectroscopie optique car elles permettent de suivre des phénomènes transitoires rapides avec des temps de vie de l'ordre de la nanoseconde. Cependant, des effets de non uniformité et de non linéarité du gain  $G_0$  sur l'ensemble de la matrice de ces caméras peuvent induire des erreurs de mesures quantitatives d'émissions lumineuses [98].

Le principe de fonctionnement de ce type de caméra repose sur la collection des photons émis par le milieu sondé sur une photocathode convertissant les photons en électrons. En sortie de la photocathode est placée une plaque de micro-canaux (Micro Channel Plate : MCP), permettant une multiplication de ces électrons qui sont ensuite reconvertis en photons par un écran fluorescent. Ce système permet donc de générer un gain en photons variable selon la tension appliquée au MCP à l'origine de l'amplification du signal (cf. *Figure 3-11 a*). Cependant, cette amplification du signal n'est pas uniforme sur toute la matrice de la caméra à cause de la sensibilité variable des photocathodes, de l'écran phosphorescent et de la matrice du capteur CCD intégré dans la caméra.

La mise en évidence de cet effet de non uniformité et de non linéarité du gain  $G_0$  peut se faire en enregistrant l'émission d'une source stationnaire et spatialement homogène pour générer une image plane et homogène communément appelé flat field. La *Figure 3-11 b*) représente le flat field obtenu à partir d'une lampe Halogène-Deutérium dont l'émission est uniformément enregistrée sur la matrice de la caméra. La lampe est montée sur un support qui se déplace verticalement de bas en haut à vitesse constante et son émission continue est enregistrée de façon continue par la caméra. Le spectre obtenu n'est pas uniforme et présente des zones moins lumineuses jusqu'à 30 % du signal maximal. Des pixels déficients d'intensités plus ou moins faibles sont aussi mis en évidence. C'est ainsi que ces irrégularités de gains de la caméra peuvent entraîner des erreurs de mesures quantitatives et la correction du flat field se fait généralement en divisant les spectres bruts par le spectre de correction (flat field) sur toute la taille de la matrice de la caméra [98]–[100].

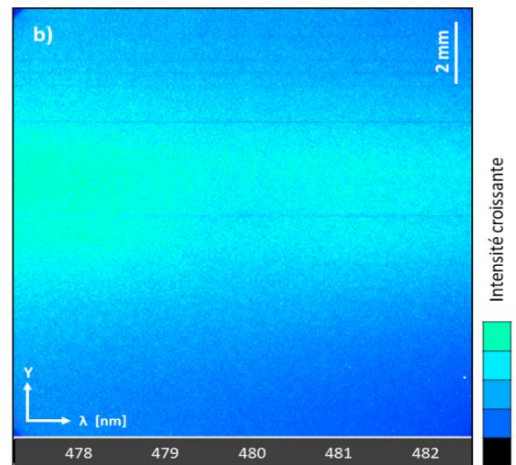
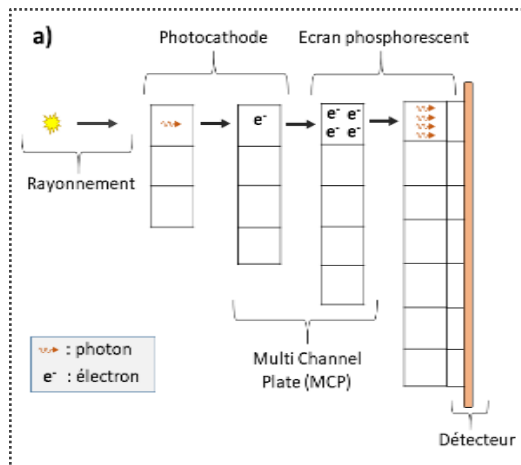


Figure 3-11 : Correction du gain de la caméra ; Réseau de 2400 traits.mm<sup>-1</sup> ;  $G_0 = 50$  ;  $t_{exp} = 11$  s ;  $N_{acc} = 20$ .

### 3.5.6 Calibration en intensité

Le spectre brut mesuré par le spectromètre comprend l'émission lumineuse du plasma dont la répartition en fonction de la longueur d'onde d'acquisition est modifiée par la transmission des composantes optiques, la dispersion du réseau de diffraction et la sensibilité du capteur ICCD. Le spectre réel est obtenu en calibrant le spectromètre en énergie. Il s'agit de mesurer exactement dans les mêmes conditions que l'enregistrement, l'intensité lumineuse  $I_0(\lambda)$  d'une source de référence dont l'émissivité  $\epsilon_0(\lambda)$  en fonction de la longueur d'onde, est connue. Le coefficient de calibration en énergie  $C_0(\lambda)$  est égal au rapport entre l'intensité lumineuse enregistrée et l'émissivité connue de la source de référence :  $C_0(\lambda) = \frac{I_0(\lambda)}{\epsilon_0(\lambda)}$  ; où  $\lambda$  est la longueur d'onde.

La Figure 3-12 représente le coefficient de calibration en énergie du spectromètre, déterminé en utilisant une lampe de tungstène comme référence. Pour déterminer la forme réelle des spectres expérimentaux il suffit de diviser le signal mesuré expérimentalement à chaque longueur d'onde par ce coefficient de calibration pour une longueur d'onde donnée, et ainsi d'accéder à l'émissivité de la transition.



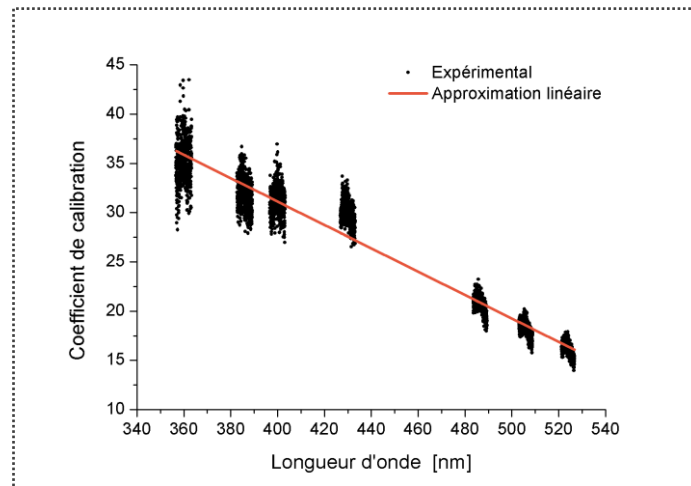


Figure 3-12 : Coefficient de calibration en énergie en fonction de la longueur d'onde ; Réseau de 1200 traits.mm<sup>-1</sup> ;  $e_{spect} = 30 \mu\text{m}$ .

### 3.6 Évolutions de la décharge

L'évolution spatio-temporelle de la décharge peut être caractérisée en utilisant des moyens de cinématographie rapide et de mesure de paramètres électriques à l'aide d'un oscilloscope rapide. Dans ce qui suit, le système d'acquisition est déclenché sur l'amorçage de l'étincelle, et le « gate delay »  $t_{gd}$  choisi pour la caméra ICCD correspond au moment d'observation de la décharge.

#### 3.6.1 Aspect du plasma en fonction de la durée de décharge

L'aspect du plasma de décharge est différent en fonction de sa durée  $\tau_{arc}$ . Nous avons fait cette observation en utilisant occasionnellement une caméra ultra-rapide fournissant  $3 \times 10^5$  images par seconde. La Figure 3-13 présente l'évolution temporelle de la forme de la décharge pour deux durées de décharge :  $\tau_{arc} = 50 \mu\text{s}$  et  $\tau_{arc} = 5 \text{ms}$ . Nous remarquons d'abord que, à cause de l'impulsion haute tension aidant à l'établissement de la décharge (cf. sous-section 3.5.1), l'amorçage est indépendant de la durée de décharge. En revanche, le plasma de décharge est ensuite plus lumineux et plus homogène en terme d'émission lumineuse pour  $\tau_{arc} = 50 \mu\text{s}$ , alors que la colonne de plasma devient moins lumineuse et plus diffuse pour  $\tau_{arc} = 5 \text{ms}$ . Cette baisse de luminosité à la colonne s'explique par la diminution de la puissance  $P_{arc}$  de la décharge avec l'augmentation de la durée de décharge ( $P_{arc} = E_{arc} / \tau_{arc}$ ), pour une même énergie  $E_{arc}$ . Aussi, la diffusion thermique et l'ionisation des zones périphériques de la colonne entraînent une expansion nette du plasma au-delà de  $50 \mu\text{s}$ . L'augmentation de  $\tau_{arc}$  entraîne aussi un taux d'érosion

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

plus important au niveau des électrodes qui projettent alors une plus grande quantité de vapeurs métalliques avec notamment une forte activité entre 250  $\mu\text{s}$  et 1000  $\mu\text{s}$ .

Ces observations nous permettent alors de définir principalement deux comportements distincts de la décharge selon sa durée :

- Dans le cas d'une décharge de courte durée ( $\tau_{arc} \leq 100 \mu\text{s}$ ), le plasma est relativement stable et les positions des spots anodique et cathodique sont assez bien définies avec aussi une colonne de décharge plus fine. Le spot cathodique occupe la partie la plus importante du plasma.
- Dans le cas d'une décharge de durée suffisamment longue ( $\tau_{arc} > 100 \mu\text{s}$ ), la colonne est très diffuse et le spot cathodique se déplace sur la pointe, certainement en fonction du travail de sortie du matériau qui peut évoluer selon l'oxydation par exemple.

Dans tous les cas, il y a génération de vapeurs métalliques. Mais ce phénomène est plus important avec l'augmentation de la durée de la décharge, générant une fusion/vaporisation d'une quantité plus importante de métal. Cette présence des vapeurs métalliques à proximité des électrodes se traduit par un rayonnement très intense, et confirme l'érosion progressive des électrodes après la génération de décharges successives (cf. *Figure 3-10*). En conséquence, il apparaît un déplacement rapide du spot cathodique sur la cathode, lié au fait que les électrons ont tendance à chercher à minimiser leur travail de sortie, et les décharges deviennent de moins en moins stables spatialement.

L'étude spectroscopique du plasma requiert une bonne reproductibilité spatiale de la colonne de plasma, pour s'assurer de diagnostiquer toujours la même zone choisie entre les deux électrodes : il est donc indispensable de travailler avec des durées de décharge  $\tau_{arc}$  limitées, et de retailler régulièrement les électrodes (toutes les quelques dizaines d'allumage).

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

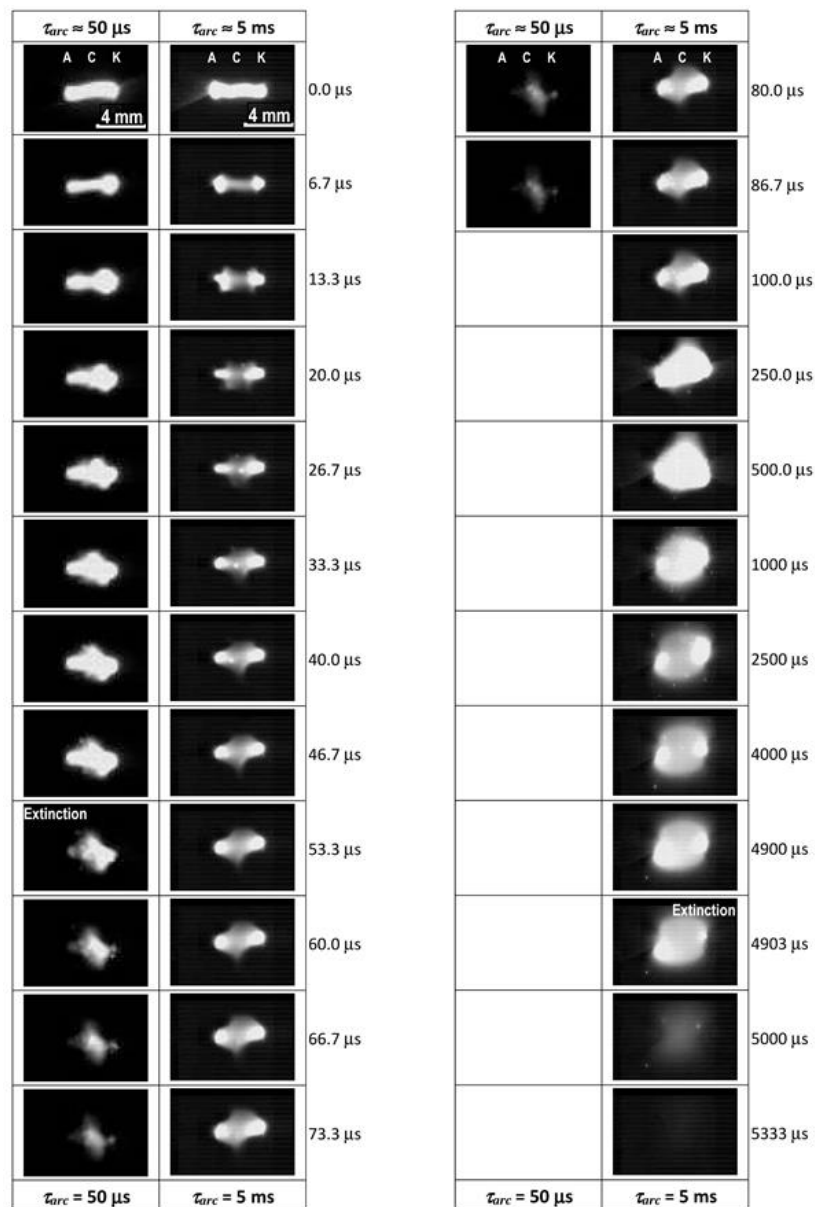


Figure 3-13 : Aspect du plasma en fonction de la durée  $\tau_{arc}$  de décharge ;  $d_{elec} = 4 \text{ mm}$  ;  $I_{arc} = 4 \text{ A}$  ;  $U_{arc} = 80 \text{ V}$ .  
Le moment d'observation après l'allumage  $t_{gd}$  est indiqué à droite des images.

Dans la suite de cette étude, nous avons limité notre analyse :

- À trois zones de la colonne de plasma, dénommées (K) au voisinage de la cathode, (A) au voisinage de l'anode et (C) pour la partie médiane de la colonne.
- À des durées de décharge  $\tau_{arc} = 100 \mu\text{s}$  permettant d'obtenir des décharges reproductibles et des mesures spectroscopiques plus fiables tout en fournissant une énergie  $E_{arc} \approx 32 \text{ mJ}$ , supérieure à l'EMI de la plupart des poudres métalliques [59],

[62], [101], [102]. En particulier, l'EMI de la poudre d'aluminium déterminée par Bernard et al. [59] en utilisant notre dispositif de génération de décharge implanté dans un tube de Hartmann (avec une poudre de granulométrie de l'ordre  $25,7 \mu\text{m}$  et une concentration de  $200 \text{ mg.L}^{-1}$ ), est de l'ordre de  $31 \text{ mJ}$  pour une probabilité d'inflammation de  $10 \%$  (cf. *Figure 3-1*, page 53, extraite de [59]), alors que Sankhé et al. [62] ont obtenu une EMI d'environ  $19 \text{ mJ}$  pour une poudre d'aluminium de  $25,3 \mu\text{m}$  de diamètre avec une concentration de  $300 \text{ mg.L}^{-1}$ . Ce qui est tout à fait normale car nous observons que la plus petite valeur de l'énergie d'allumage (EMI) est obtenue pour des concentrations généralement supérieures à la stœchiométrie.

#### 3.6.2 Évolution spatio-temporelle de la décharge de durée $100 \mu\text{s}$

Une observation de la décharge d'une durée de  $100 \mu\text{s}$  par imagerie rapide (cf. *Figure 3-14* où nous avons défini les directions spatiales  $X$  et  $Y$ ), combinée à la mesure de ses paramètres électriques (cf. *Figure 3-9*), permet de décrire son évolution temporelle. Ces observations montrent que la colonne de plasma présente une symétrie cylindrique assez marquée et nous pouvons définir trois phases principales de la décharge :

- La première période, qui dure environ  $2 \text{ ns}$ , correspond à l'impulsion haute tension de la phase d'allumage pendant laquelle la luminosité de la colonne de plasma varie considérablement, tout comme les valeurs du couple courant/tension enregistrées simultanément.
- Juste après l'allumage, les paramètres électriques et la luminosité du plasma semblent se stabiliser pendant une période d'environ  $90 \mu\text{s}$ . Ce plasma créé entre les deux électrodes s'expand latéralement avant de se stabiliser. La forme courbée typique de l'arc électrique n'apparaît que dans les derniers instants de la décharge. Il apparaît clairement le long de l'axe une zone plus lumineuse correspondant à la zone de passage du courant favorisée par la présence de vapeurs métalliques. La stabilité de cette zone est très favorable à l'existence d'un équilibre thermodynamique local dans la colonne de décharge. En effet, les décharges continues fournissent une énergie thermique qui réduit l'effet des pertes thermiques par diffusion de la chaleur du centre du plasma à sa périphérie. De plus, le plasma est confiné par le gaz ambiant (air) peu impliqué dans les processus radiatifs.
- Enfin, la rupture de tension est suivie d'une distribution quasi sphérique du plasma en extinction. Finalement, l'extinction complète en post-décharge est obtenue jusqu'à  $240 \mu\text{s}$  après la fin de l'impulsion électrique : c'est plus du double de la durée de la décharge.

Maly et Vogel [103] ont montré que le processus de décharge électrique pourrait être divisé en trois phases : l'amorçage, la décharge d'arc et la décharge luminescente. C'est une description similaire au comportement de notre décharge en régime d'arc.

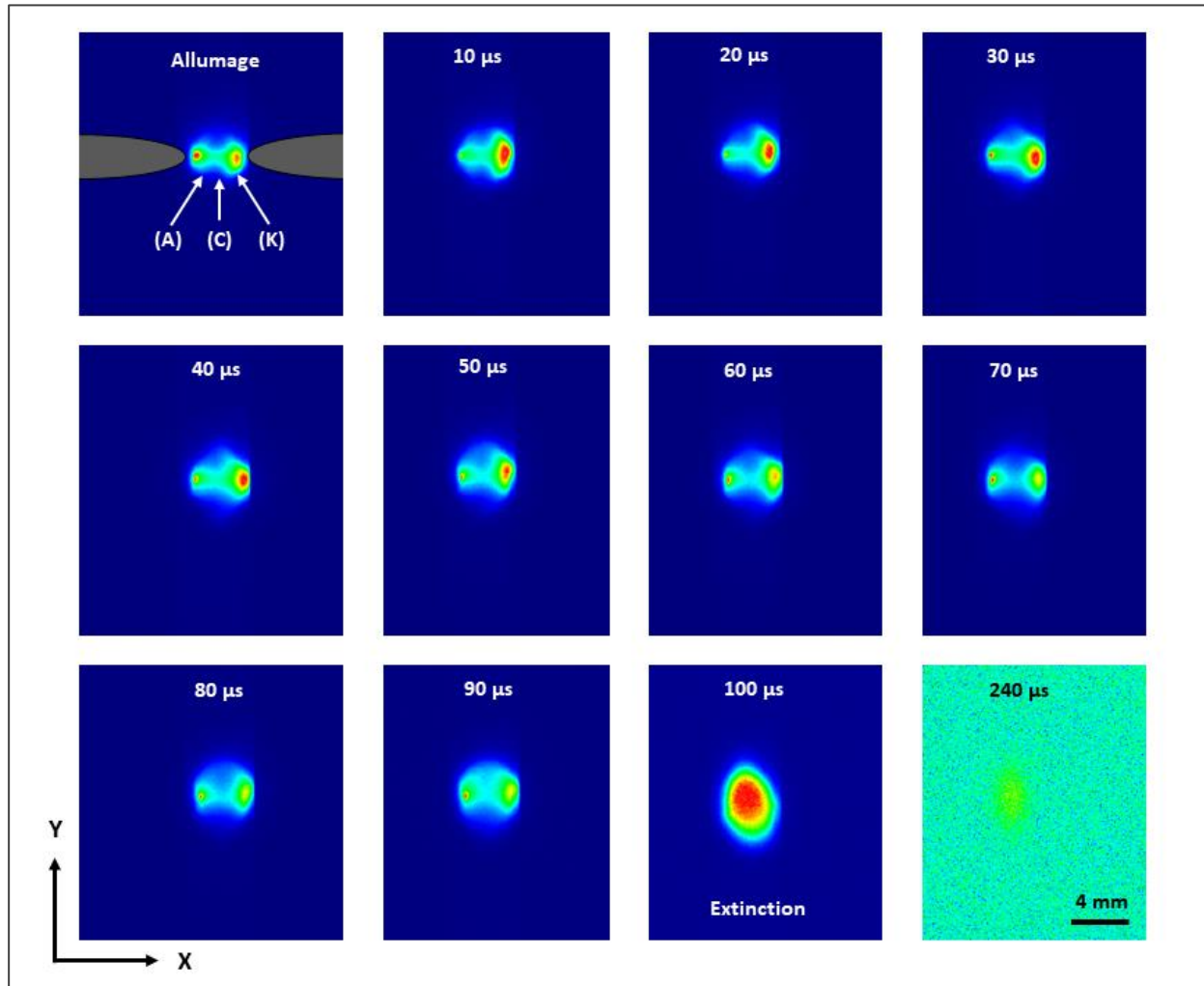


Figure 3-14 : Évolution spatio-temporelle du plasma de décharge de l'allumage à l'extinction dans l'air ;  
 $d_{elec} = 4 \text{ mm}$  ;  $\tau_{arc} = 100 \text{ } \mu\text{s}$  ;  $I_{arc} = 4 \text{ A}$  ;  $U_{arc} = 80 \text{ V}$  ;  $t_{exp} = 10 \text{ } \mu\text{s}$ .

### 3.7 Le spectre d'émission du plasma de décharge

Compte-tenu des observations précédentes, l'étude du plasma est faite de l'amorçage jusqu'à  $99 \text{ } \mu\text{s}$ . Pour assurer la stabilité de la colonne (notamment du pied d'arc à la cathode), les électrodes sont nettoyées et retaillées après chaque série de mesures.

La zone étudiée (C) de la colonne de plasma se situe au milieu de l'axe de la décharge. Pour les régions du plasma situées à proximité des électrodes, nous fixons les deux zones d'étude (A) et (K) à une distance de  $0,4 \text{ mm}$  de chaque électrode.

Le spectre d'émission du plasma de décharge, présenté sur la *Figure 3-15*, révèle une prédominance des raies de tungstène atomique W I dans les trois zones étudiées

(anode, colonne et cathode). Quelques raies ioniques de W II ont été aussi observées mais leur nombre et leurs intensités sont insuffisants pour déterminer leur température d'excitation par un graphe de Boltzmann. Le cérium dopant, dont l'énergie de première ionisation de 5,53 eV est légèrement inférieure à celle du tungstène (7,86 eV), est présent dans le spectre mais les raies spectrales ne sont pas suffisamment intenses pour être exploitées. Étant donné que le plasma est formé dans l'air, des raies atomiques d'azote et d'oxygène ont été observées ainsi que des bandes moléculaires de diazote. Ces dernières ont permis de déterminer, par spectroscopie moléculaire, les caractéristiques du gaz dans et autour de la colonne d'arc (cf. sous-section 3.10.7, page 87).

Par souci de pouvoir suivre l'évolution spatio-temporelle de la température du plasma, nous avons décidé d'exploiter les raies de W I afin de calculer la température d'excitation, la densité électronique et la composition du plasma.

L'étude spectroscopique se fait hors du tube de Hartmann, dans l'air à la pression atmosphérique. Les principales difficultés rencontrées sont l'érosion des électrodes augmentant la distance inter-électrodes, le déplacement des spots cathodique et anodique modifiant l'emplacement de la décharge, et la faible intensité lumineuse. Pour réduire l'impact de ces instabilités, les données sont accumulées sur la matrice de la caméra jusqu'à un total de 70 décharges pour chaque mesure avec un temps d'exposition  $t_{exp}$  fixé à 10  $\mu$ s.

Les signaux enregistrés sur la matrice ICCD fournissent les spectres d'émission intégrés de la décharge à différentes positions, dans la ligne de visée optique perpendiculaire à l'axe de la colonne de plasma. Une inversion d'Abel a été réalisée pour obtenir la distribution spatiale des intensités des raies spectrales en supposant une symétrie cylindrique de rayon  $R$  de l'axe inter-électrodes à la périphérie du plasma. Un des paramètres clés de la procédure utilisée, basée sur l'utilisation d'un lissage *spline* cubique des données, est le coefficient de lissage des données, qui doit être choisi avec soin, d'une part pour supprimer les points « aberrants » ou les variations trop brutales qui seraient amplifiées par la présence de la dérivée dans l'intégrale à calculer (cf. *équation 2.21*), et d'autre part afin de ne pas perdre d'information en raison d'un trop fort lissage. Dans le cadre de cette étude, ce coefficient sera fixé à 3 % (cf. sous-section 4.6.4, page 118).

## Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

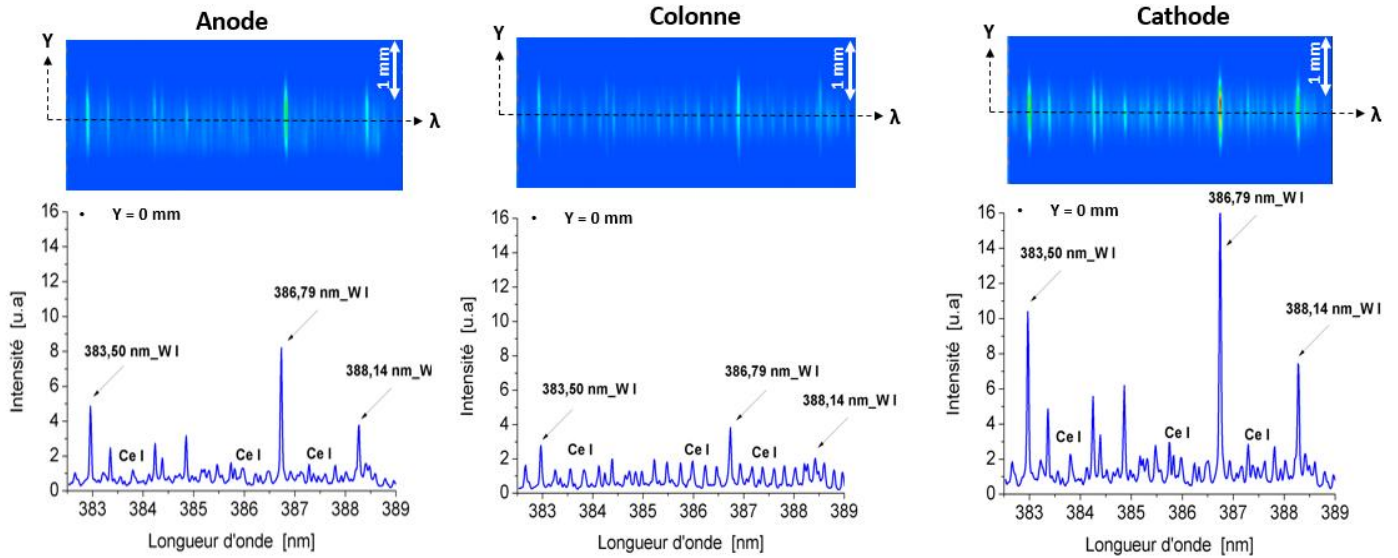


Figure 3-15 : Spectres enregistrés sur l'axe de la colonne ( $Y = 0$  mm) dans chaque zone de la décharge ;  $\tau_{arc} = 100 \mu\text{s}$  ;  $t_{gd} = 50 \mu\text{s}$  ;  $t_{exp} = 10 \mu\text{s}$  ;  $e_{spect} = 50 \mu\text{m}$  ; Réseau de 2400 traits. $\text{mm}^{-1}$ .

### 3.8 Calcul de la température d'excitation

La température d'excitation  $T_{ex}$  des raies de W I a été déterminée en supposant l'existence de l'équilibre d'excitation pour le tungstène neutre et en utilisant l'équation de Boltzmann suivante (cf. équation 2.23) :

$$Y = \ln \left( \frac{\epsilon_{ul} \lambda_{ul}}{g_u A_{ul}} \right) = - \frac{E_u}{k_B T_{ex}} + \text{constante} \quad 3.5$$

Les constantes spectroscopiques utilisées, fournies par le NIST [2], sont présentées dans le *Tableau 5*. Connaissant les valeurs des  $\epsilon_{ul}$  déterminées expérimentalement, il suffit de tracer  $Y$  en fonction des niveaux d'énergies de départ  $E_u$ . L'écart en énergie entre les niveaux d'énergies de départ  $E_u$  n'est pas toujours significatif car inférieur à 1 eV. Il faut aussi noter que l'écart entre les niveaux d'énergies de départ  $E_u$  et d'arrivée  $E_l$  est relativement faible, surtout pour la raie W I à 505,32 nm. Ceci peut favoriser l'auto-absorption et des incertitudes de mesure de la température d'excitation. Cependant, avec l'utilisation d'une dizaine de points expérimentaux d'émissivités  $\epsilon_{ul}$ , nous obtenons une droite bien définie (cf. *Figure 3-16*) sur l'ensemble de nos mesures et validant ainsi l'hypothèse d'équilibre d'excitation du tungstène neutre. La pente de la droite de Boltzmann permet alors d'évaluer la température d'excitation du W I au point de mesure.

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

$\lambda_{ul}$ [nm]	$g_{ul} \times A_{ul}$ [ $10^7 \text{ s}^{-1}$ ]	$E_l$ [eV]	$E_u$ [eV]	Erreur sur $A_{ul}$
361,75	7,70	0,365	3,792	B
383,50	2,60	0,412	3,644	B
386,79	4,10	0,365	3,570	B
388,14	2,05	0,598	3,792	B
400,87	14,70	0,365	3,457	B
429,46	6,20	0,365	3,252	A
430,21	2,50	0,365	3,247	B
484,38	0,95	0,412	2,971	B
488,68	0,89	0,771	3,307	B
505,32	0,57	0,207	2,659	B
522,46	0,60	0,598	2,971	B

Tableau 5 : Données spectroscopiques de W I utilisées ; Erreur sur  $A_{ul} < 3 \%$  (A) ; Erreur sur  $A_{ul} < 10 \%$  (B).

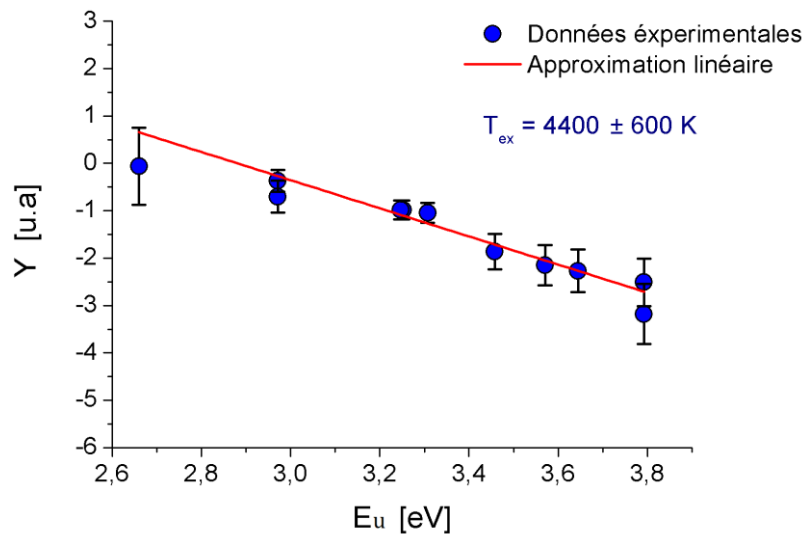


Figure 3-16 : Graphe de Boltzmann au centre de la zone anodique (A) ;  $t_{gd} = 20 \mu\text{s}$  ;  $\tau_{arc} = 100 \mu\text{s}$  ;  $r = 0 \text{ mm}$ .

### 3.9 Calcul de la densité électronique

Les raies de W I observées sont très fines, et il est difficile d'en extraire la contribution lorentzienne (largeur totale typiquement de l'ordre 0,049 nm pour la raie W I<sub>386,79</sub> nm, à comparer aux 0,041 nm de la fonction d'appareil). Par ailleurs, les



### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

élargissements Stark normalisés des raies de tungstènes ne sont pas toujours disponibles dans la littérature, et lorsqu'ils le sont, leur précision reste limitée. Aussi, nous allons évaluer la densité électronique de la décharge en utilisant les températures d'excitation  $T_{ex}$  issues des graphes de Boltzmann en supposant que le plasma est proche de l'ETL (donc  $T_e \approx T_{ex} = T$ ). Sur la base des observations des spectres d'émission, dominés par les raies de W I, nous supposerons aussi que le plasma est exclusivement composé de tungstène vaporisé issu des électrodes. La température du plasma restant inférieure à  $11 \times 10^3$  K, nous pouvons supposer que le plasma est une fois ionisé. Sa pression totale  $P$  s'exprime alors comme suit (cf. loi de Dalton, *équation 1.28*) :

$$P = (N_{WI} + N_{WII} + N_e) \times k_B T \quad 3.6$$

où  $N_{WI}$ ,  $N_{WII}$  et  $N_e$  sont respectivement la densité de W I, de W II et des électrons.

Si le plasma est une fois ionisé, alors  $N_e = N_{WII}$  :

$$P = (N_{WI} + 2 N_e) \times k_B T \quad 3.7$$

L'équation de Saha suivante décrit l'équilibre d'ionisation entre W I et W II (cf. *équation 1.26*) :

$$\frac{N_e^2}{N_{WI}} = 2 \frac{U_{WII}}{U_{WI}} \left( \frac{2\pi m_e k_B T}{h^2} \right)^{3/2} \exp \left( - \frac{E_{WI,\infty} - \Delta E_{WI,\infty}}{k_B T} \right) \quad 3.8$$

où  $U_{WI}$  et  $U_{WII}$  sont respectivement les fonctions de partition de W I et W II dont les valeurs sont fournies par [2] en fonction de la température. L'énergie d'ionisation  $E_{WI,\infty}$  de W I est de l'ordre de 7,86 eV et son abaissement  $\Delta E_{WI,\infty}$  est inférieur à  $10^{-3}$  eV même pour une température de  $11 \times 10^3$  K et une densité électronique de  $10^{20}$  cm<sup>-3</sup> (cf. *équation 1.27*, page 15), il est donc très négligeable devant  $E_{WI,\infty}$ .

Puisque la décharge éclate dans l'air avec un plasma supposé être composé de tungstène vaporisé une fois ionisé, la pression totale est proche de la pression atmosphérique. La densité électronique  $N_e$  s'obtient alors en résolvant le système de deux *équations 3.7* et *3.8* à deux inconnues ( $N_{WII}$  et  $N_e$ ).

#### 3.10 Résultats

Les évolutions temporelles des distributions radiales de la température d'excitation  $T_{ex}$  de W I et de la densité électronique  $N_e$  ont été déterminées dans les trois zones d'étude : l'anode (A), la colonne (C) et la cathode (K), de l'allumage à l'extinction de la décharge avec des erreurs de mesures inférieures à 20 %. L'exploitation des résultats

est cependant limitée à la distance  $r = \pm 0,6$  mm du centre du plasma en raison de la faiblesse des raies d'émission en périphérie du plasma.

De façon générale, nous présenterons à gauche une distribution radiale de la température d'excitation et de la densité électronique en fonction du délai d'observation après l'allumage, et à droite une cartographie 2D de leur évolution spatio-temporelle.

### 3.10.1 Évolutions spatio-temporelles de $T_{ex}$ et de $N_e$ à l'Anode

La *Figure 3-17* présente l'évolution de la distribution radiale de la température d'excitation dans la zone anodique : hormis au moment de l'extinction, elle montre clairement l'existence d'un maximum hors-axe, avec un maximum à  $r \approx \pm 0,2$  mm de l'axe de la décharge, traduisant un phénomène de refroidissement au centre du plasma. La température d'excitation semble par ailleurs évoluer en deux temps : elle présente de fortes fluctuations dans les premières 50  $\mu s$ , avant de se stabiliser ensuite. Au final, dans cette zone anodique, la température sur l'axe varie entre  $3,2 \times 10^3$  K et  $4,3 \times 10^3$  K, et augmente brutalement en fin de décharge jusqu'à atteindre  $4,8 \times 10^3$  K.

La *Figure 3-18* présente la distribution radiale de densité électronique qui varie considérablement pendant la durée de vie de la décharge, de façon similaire à la température. Au centre de la zone anodique,  $N_e$  reste relativement faible à cause du phénomène de refroidissement, à l'exception de la phase d'extinction où une densité électronique maximale de  $4 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  est atteinte.

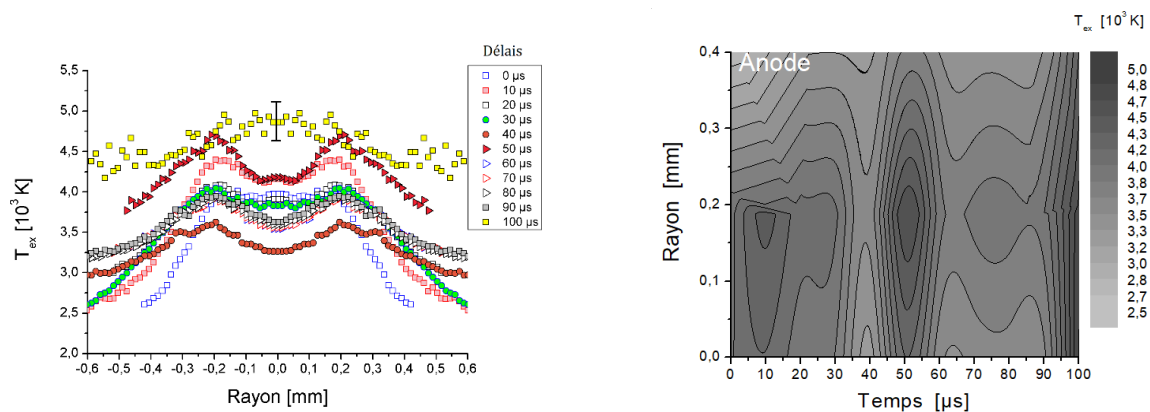


Figure 3-17 : Évolution spatio-temporelle de la température d'excitation de WI dans la zone anodique.

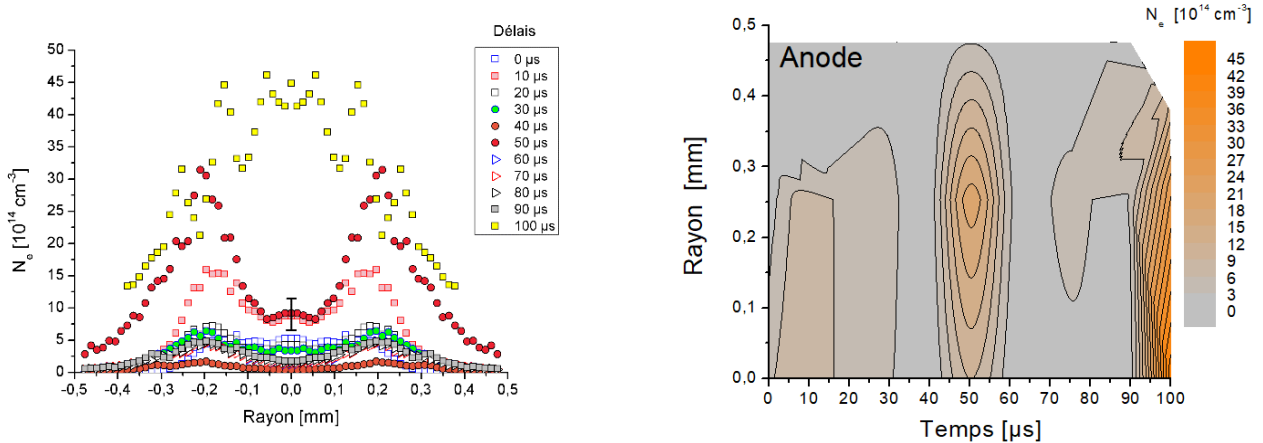


Figure 3-18 : Évolution spatio-temporelle de la densité électronique dans la zone anodique.

### 3.10.2 Évolutions spatio-temporelles de $T_{ex}$ et de $N_e$ dans la Colonne

Dans la colonne, la température d'excitation présente une large plage de variation, entre  $10 \times 10^3$  K sur l'axe au tout début de la décharge et  $3 \times 10^3$  K avant son extinction (cf. *Figure 3-19*). Néanmoins, dans la limite des barres d'incertitudes, la répartition de températures dans la colonne reste relativement stable durant toute la durée intermédiaire de la décharge, les variations observées pouvant également être liées aux variations de vapeurs métalliques éjectées de la cathode. En principe, le plasma de la colonne est principalement composé de W I radiatifs et de W II excités produits par collisions inélastiques ionisantes de W I avec des électrons cathodiques et des électrons secondaires provenant de l'ionisation de W I.

Dans la colonne de décharge (cf. *Figure 3-20*), les variations de  $N_e$  sont également importantes, suivant celles de la température. Spatialement, la densité électronique a tendance à décroître presque linéairement du centre du plasma vers sa périphérie. La valeur maximale d'environ  $2,7 \times 10^{17}$  cm<sup>-3</sup> est atteinte dès le début de la décharge.

Les valeurs de température et densité électronique observées dans la colonne sont plus faibles que celles généralement observées dans les décharges d'étincelles. Par exemple, Kurochkin et Kravchenko [104], qui ont étudié expérimentalement et numériquement une décharge d'étincelle éclatant dans l'air entre deux électrodes de tungstène-cuivre avec 5 % de cérium. Pour une distance entre les électrodes de 1 mm, une tension de l'ordre de 120 V, un courant maximum de 100 A, et un champ électrique de  $10^5$  V.m<sup>-1</sup>, (soit 10 fois supérieur à celui de la décharge étudiée), la température mesurée varie entre  $11 \times 10^3$  K et  $15,8 \times 10^3$  K pour des densités électroniques comprises entre  $6,5 \times 10^{17}$  cm<sup>-3</sup> et  $13 \times 10^{17}$  cm<sup>-3</sup> sur l'axe de la décharge produite dans l'air. Zaepffel et al. [105] ont étudié une décharge électrique entre une cathode en alliage de 72 % de

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

tungstène et 28 % de cuivre et une anode en tungstène pur, éclatant dans un mélange de méthane et d'air sec afin d'utiliser les données comme condition initiale dans une simulation numérique. La densité électronique du plasma, dans les dix premières microsecondes après l'allumage, atteignait  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$  et la température avoisinait 11000 K. Ces résultats sont donc semblables aux valeurs que nous avons déterminées dans la colonne.

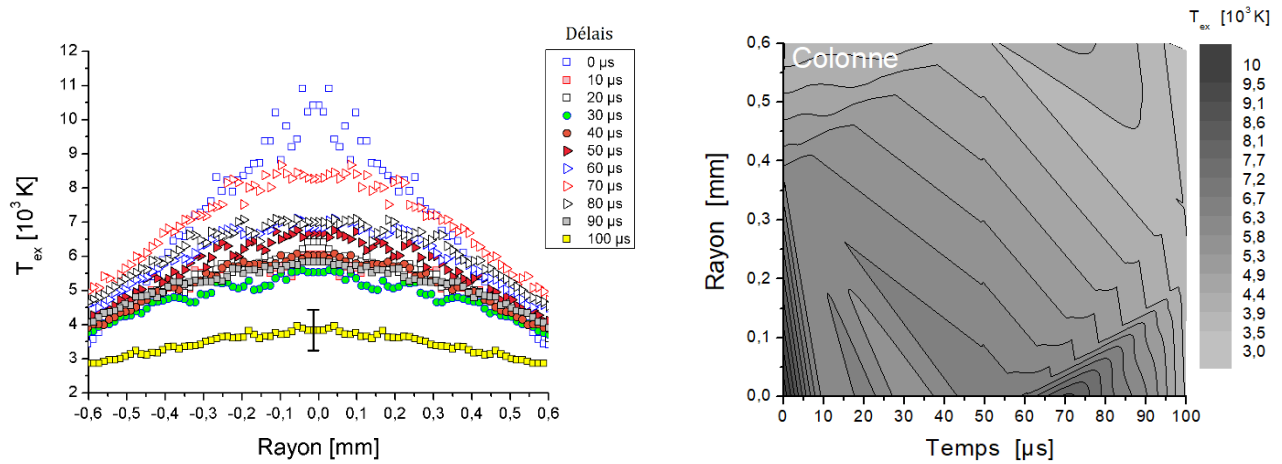


Figure 3-19 : Évolution spatio-temporelle de la température d'excitation de WI dans la colonne.

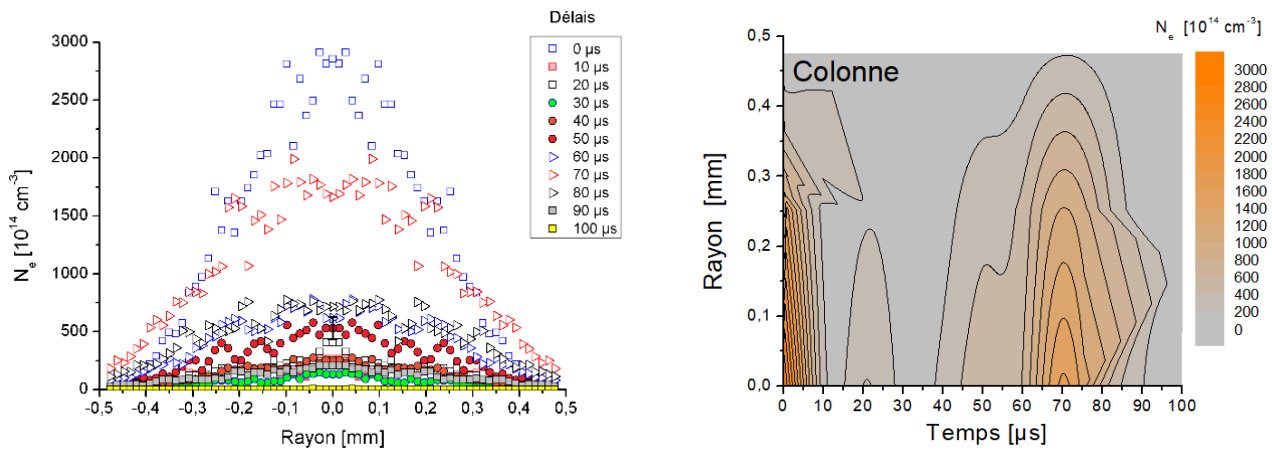


Figure 3-20 : Évolution spatio-temporelle de la densité électronique dans la colonne.

3.10.3 Évolutions spatio-temporelles de  $T_{ex}$  et de  $N_e$  à la Cathode

La région proche de la cathode est la zone la plus brillante et sa température d'excitation est la plus stable temporellement par rapport à l'anode et à la colonne (cf. Figure 3-21). Cette stabilité s'explique par de nombreuses collisions électrons/atomes qui ont tendance à faire converger les températures des atomes de tungstène vers la même valeur. Tout au long de la décharge, la température avoisine les  $4,3 \times 10^3$  K mais augmente légèrement après environ  $70 \mu\text{s}$ . Un léger refroidissement est visible au centre de la zone cathodique. Cependant, compte tenu des incertitudes de mesure, la température peut être considérée comme étant constante de l'axe de la colonne jusqu'à  $r \approx \pm 0,2$  mm, avant de diminuer linéairement vers les zones périphériques. La température décroît brutalement à environ  $2,5 \times 10^3$  K au centre du plasma au moment de l'extinction.

Dans la zone cathodique, les variations temporelles de la densité électronique sont faibles autour de  $8 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  au centre de la zone cathodique (cf. Figure 3-22). Le refroidissement à la zone centrale fait apparaître un pic de la densité électronique à  $r \approx \pm 0,2$  mm. Une baisse importante de  $N_e$  est observée à l'extinction de la décharge.

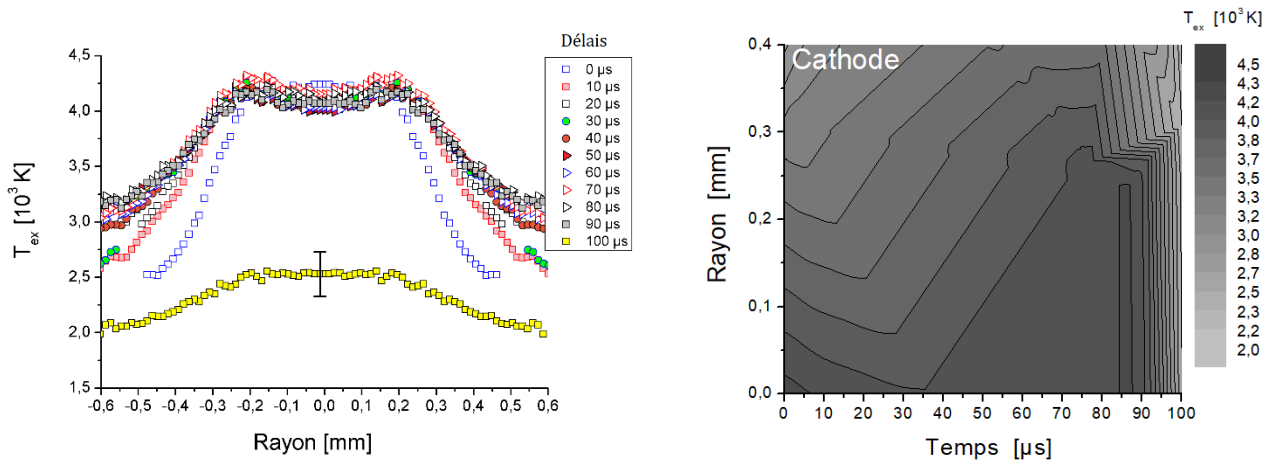


Figure 3-21 : Évolution spatio-temporelle de la température d'excitation de W I dans la zone cathodique.

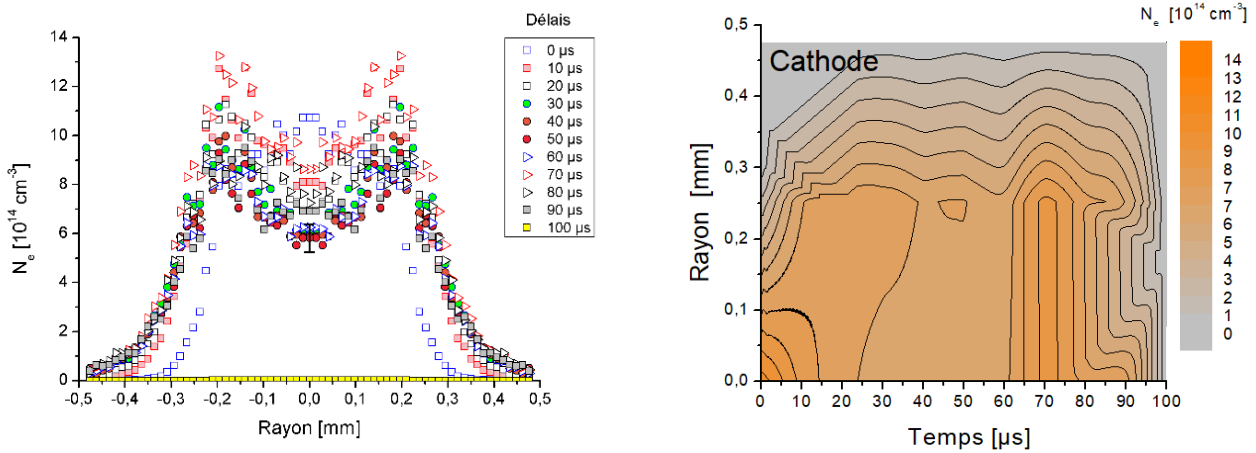


Figure 3-22 : Évolution spatio-temporelle de la densité électronique dans la zone cathodique.

### 3.10.4 Disparités dans les différentes zones du plasma

La *Figure 3-23 a)* et la *Figure 3-23 b)* montrent les variations temporelles de la température et de la densité électronique au centre de chaque zone ( $r = 0$  mm).

À l'anode et la cathode, la température est relativement constante pendant toute la durée de vie du plasma avec quelques fluctuations à l'anode. Cependant, il existe un maximum de température hors axe, dans les régions proches des électrodes (cf. *Figure 3-17* et *Figure 3-21*) en raison d'un refroidissement important lié à l'existence d'une forte proportion de vapeurs métalliques qui absorbent une partie de l'énergie puis la dissipent par désexcitations radiatives. Cet effet est nettement renforcé dans la zone anodique. Il est à noter que cet effet rend caduque les évaluations de températures faites sur l'axe du plasma en utilisant la méthode du Graphe de Boltzmann modifié [62], [78]. En effet, l'application de cette dernière repose sur des mesures optiques intégrées radialement, impose d'avoir un maximum de température sur l'axe. C'est probablement ce qui explique l'important écart observé dans la zone anodique, entre les résultats présentés dans [62] et ceux obtenus ici, à savoir respectivement  $(10480 \pm 890)$  K et environ 3500 K.

La colonne, qui fournit le volume d'interaction le plus important entre la décharge et la matière à enflammer, est la plus représentative du plasma avec une température plus élevée et subit moins l'effet de refroidissement par les vapeurs métalliques. Dans la colonne, la température et la densité électronique diminuent aussi dans le temps toujours en raison de la dissipation de l'énergie thermique du centre du plasma vers sa périphérie et de la recombinaison à trois corps, respectivement.

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

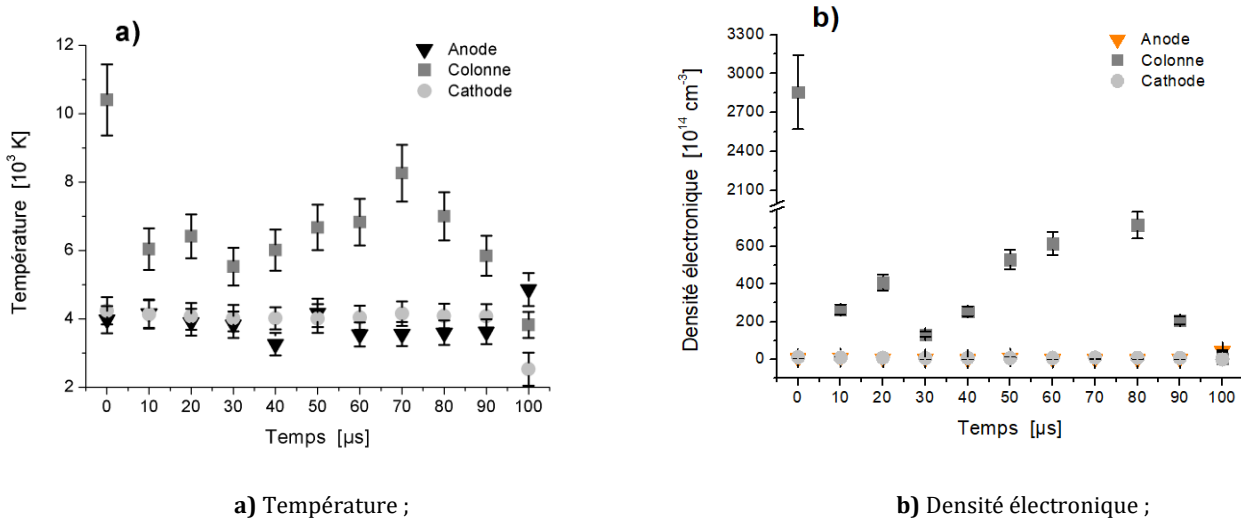


Figure 3-23 : Évolution des paramètres du plasma sur l'axe ( $r = 0$  mm), dans les 3 zones d'étude.

#### 3.10.5 Évaluation de l'ETL au centre des 3 zones d'étude

La vérification de l'existence de l'ETL est possible en se basant sur le critère de McWhirter (cf. *équation 1.33*) applicable aux plasmas homogènes et stationnaires. C'est un critère nécessaire mais pas suffisant pour l'existence d'un ETL dans le plasma de décharge et qui repose sur une densité électronique minimale pour garantir l'ETL.

La *Figure 3-24* représente l'évolution de la densité électronique expérimentale et de la densité électronique minimale issue du critère de McWhirter en fonction du temps, au centre du plasma ( $r = 0$  mm), dans les 3 zones étudiées. La densité électronique minimale du critère de McWhirter a été calculée en utilisant la température d'excitation de WI et l'écart d'énergie maximal correspondant à la raie de WI de longueur d'onde 245,19 nm, de la transition d'énergie de départ  $E_u = 5,05$  eV vers l'état fondamental d'énergie  $E_l = 0,00$  eV. À l'anode et à la cathode, il ne semble pas y avoir d'ETL car les densités électroniques dans ces zones sont toujours inférieures aux densités électroniques minimales du critère de McWhirter. Par conséquent, les températures mesurées à l'anode et à la cathode ne représentent que des températures d'excitation de WI. Dans ces conditions, les densités électroniques évaluées à l'anode et la cathode avec l'hypothèse d'ETL sont à prendre avec beaucoup de précaution ! Cependant, hormis au moment de l'extinction du plasma, les densités électroniques évaluées au centre de la colonne sont toujours supérieures aux densités électroniques minimales du critère de McWhirter. Il semble donc que l'hypothèse d'ETL soit valable dans le centre de la colonne, comme cela est très généralement admis [106], [107]. La *Figure 3-25* présente la vérification spatio-temporelle du critère de McWhirter dans la zone (C) de la colonne. Ce critère reste vérifié dans une large zone du plasma, sauf peut-être en périphérie à environ

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

30  $\mu\text{s}$  après l'allumage, probablement en raison du passage d'une goutte de métal générant ainsi un fort refroidissement et une rupture de l'ETL au-delà de  $r \approx 0,3$  mm.

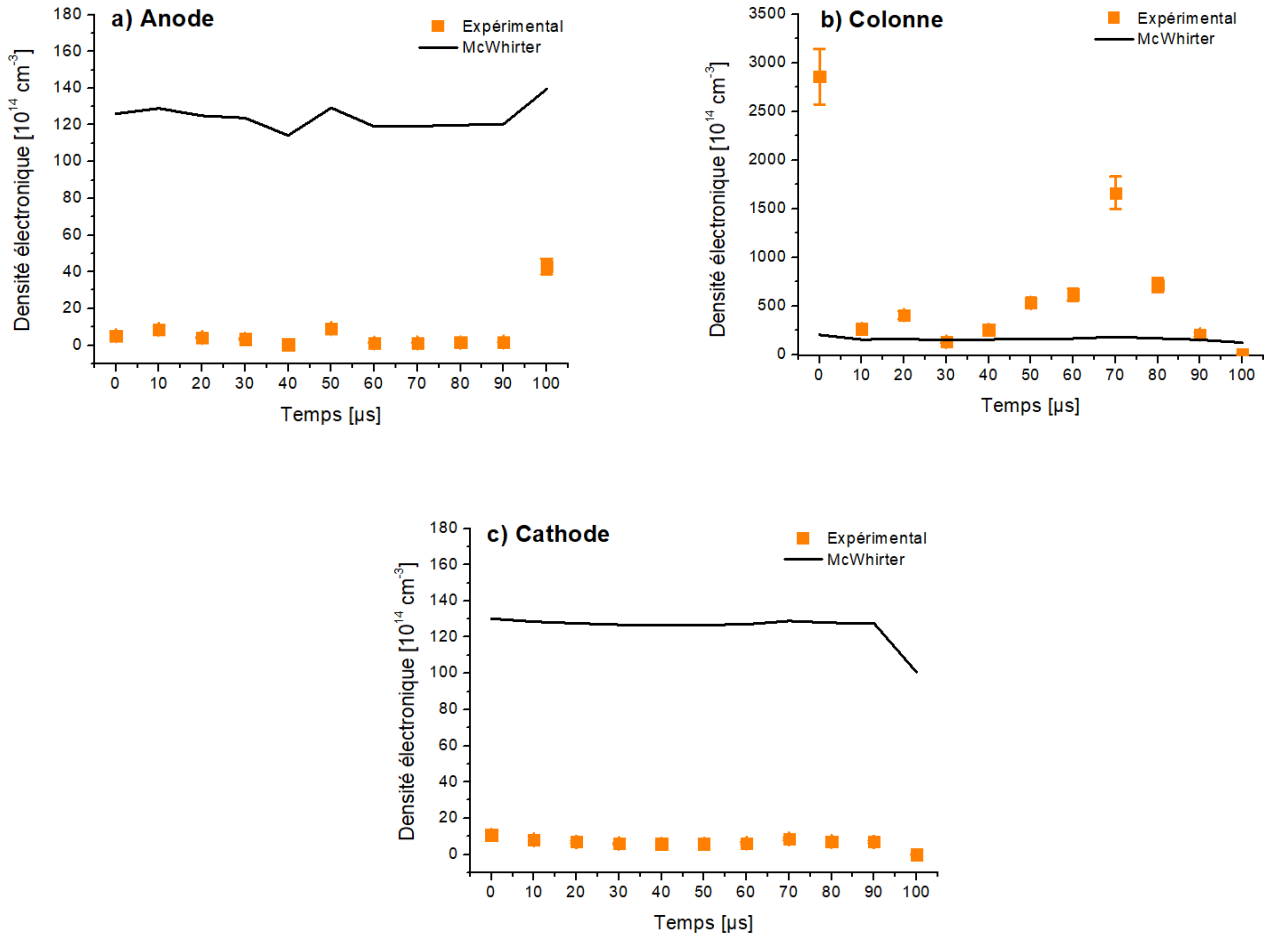


Figure 3-24 : Évolutions de la densité électronique expérimentale et de la densité électronique minimale du critère de McWhirter en fonction du temps ;  $r = 0$  mm.



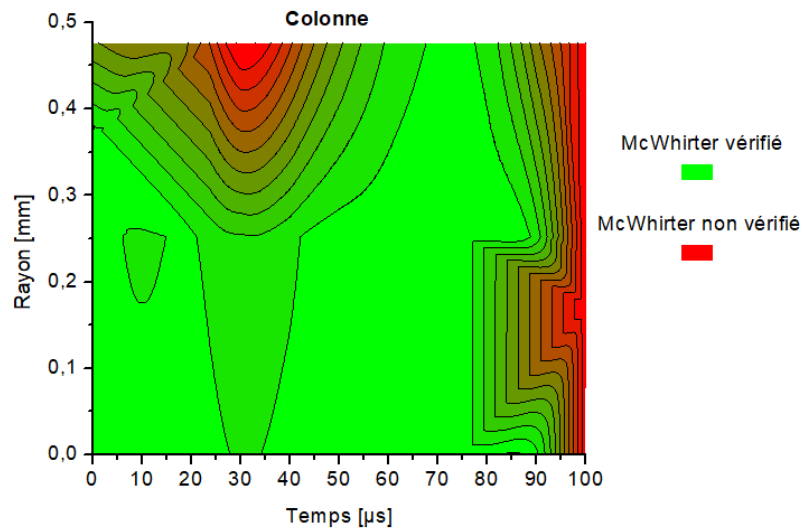


Figure 3-25 : Vérification spatio-temporelle du critère de McWhirter dans la colonne.

### 3.10.6 Composition du plasma de la colonne de décharge

L'énergie thermique de la décharge est principalement répartie dans la colonne qui occupe la plus grande partie du plasma et atteint les plus grandes valeurs de températures et de densités électroniques. Nous avons donc choisi de déterminer la composition du plasma dans la colonne où l'hypothèse de l'existence de l'ETL reste valable. Afin d'analyser la variation spatiale de la composition du plasma, nous avons aussi choisi 3 délais caractéristiques : le début (0  $\mu\text{s}$ ), le milieu (50  $\mu\text{s}$ ) et la fin (100  $\mu\text{s}$ ) de la décharge.

La *Figure 3-26* représente la composition du plasma dans la colonne pour ces 3 délais en supposant que  $N_{WII} = N_e$ . À partir du centre du plasma jusqu'à  $r \approx \pm 0,5$  mm, nous remarquons que  $N_{WII}$  diminue linéairement vers la périphérie du plasma tandis que  $N_{WI}$  augmente à tout moment. Globalement,  $N_{WII}$  diminue avec le temps tandis que  $N_{WI}$  augmente. Cette augmentation de  $N_{WI}$  se fait au détriment de  $N_{WII}$  à cause du phénomène de recombinaison à trois corps de  $N_{WII}$  avec les électrons libres.

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

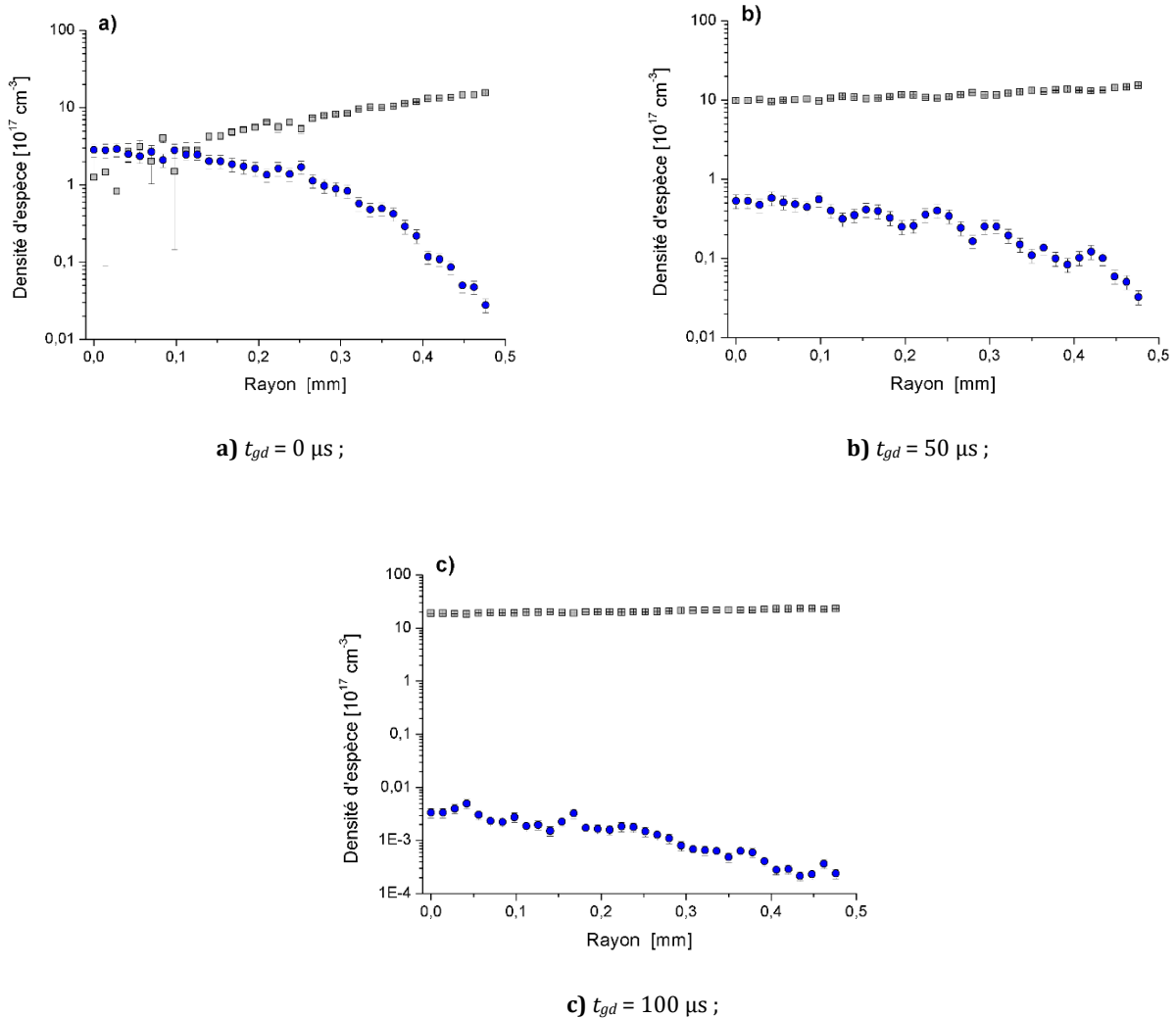


Figure 3-26 : Composition du plasma dans la colonne à trois instants après l'allumage ; (■) WI ; (●) WII.

#### 3.10.7 Température du gaz

Il peut être intéressant de tenter de déterminer par spectroscopie moléculaire, les caractéristiques du gaz dans et autour de la colonne d'arc. Malheureusement, compte tenu du fort rayonnement des raies de tungstène dans le plasma, il a été impossible d'en réaliser une mesure résolue spatialement et/ou temporellement.

Pour travailler dans une zone où le plasma semble le plus stationnaire, la durée de la décharge est ici fixée à  $50 \mu\text{s}$  (énergie de décharge  $E_{arc} = 16 \text{ mJ}$ ), le spectromètre Acton est utilisé dans sa configuration avec le réseau à  $1200 \text{ traits.mm}^{-1}$ , et le spectre émis par une seule étincelle, est intégré spatialement sur toute une section de la colonne, et temporellement sur toute la durée de la décharge (déclenchement de la caméra ICCD

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

$t_{gd} = 10 \mu\text{s}$  après le début de l'étincelle, avec un temps d'exposition  $t_{exp} = 50 \mu\text{s}$  choisi pour enregistrer les spectres correspondant à la durée de vie totale de l'étincelle). En conséquence, les températures mesurées sont « moyennées » dans le temps [78].

Le rayonnement du plasma est dominé par le matériel érodé de la pointe de la cathode, qui se propage dans la colonne, mais quelques raies d'azote atomique sont également présentes, ainsi que les triplets d'oxygène O I bien connus aux environs de 777 nm et 844 nm. Par ailleurs, le premier système négatif  $B^2 \Sigma_u^+ \rightarrow X^2 \Sigma_g^+$  de  $N_2^+$  apparaît clairement dans la colonne et à proximité de l'anode, ainsi que, dans des conditions particulières, quelques bandes du second système positif  $C^3 \Pi \rightarrow B^3 \Pi$  d'azote moléculaire  $N_2$  (tête de bandes à 337,13 nm, 380,49 nm, etc.) et parfois le spectre moléculaire UV de OH à 306,36 nm. Il semble néanmoins que ces derniers soient plutôt émis dans les zones périphériques du plasma. Ceci est confirmé par les enregistrements effectués au moment de l'extinction de la colonne, où les raies métalliques disparaissent très rapidement au profit des spectres moléculaires [78].

L'exploitation de ces spectres moléculaires reste difficile en raison de la présence de nombreuses raies métalliques, en particulier à proximité de la cathode. Dans les autres zones (A) et (C), les spectres expérimentaux sont ajustés à des spectres simulés à l'aide du logiciel spécialisé SPECAIR 3.0 [108], en particulier dans la plage 375 nm – 395 nm où le premier système négatif  $B^2 \Sigma_u^+ \rightarrow X^2 \Sigma_g^+$  de  $N_2^+$  et le système violet  $B^2 \Sigma \rightarrow A^2 \Pi$  des spectres moléculaires de CN sont utilisés et ajustés (cf. Figure 3-27, extraite de [62]). Ici, la présence du carbone peut s'expliquer par un dépôt organique ayant probablement lieu lors du nettoyage des électrodes. Nous avons ainsi obtenu des températures électroniques, rotationnelles et vibrationnelles intégrées dans le temps et dans l'espace. Ces dernières restent néanmoins proches de la température d'excitation dans la colonne (cf. *Tableau 6*), mais supérieures à la température d'excitation à l'anode, respectivement. Nous retrouvons ici l'effet de la présence des vapeurs métalliques tendant à refroidir le plasma par rayonnement, notamment grâce aux mesures inversées spatialement.

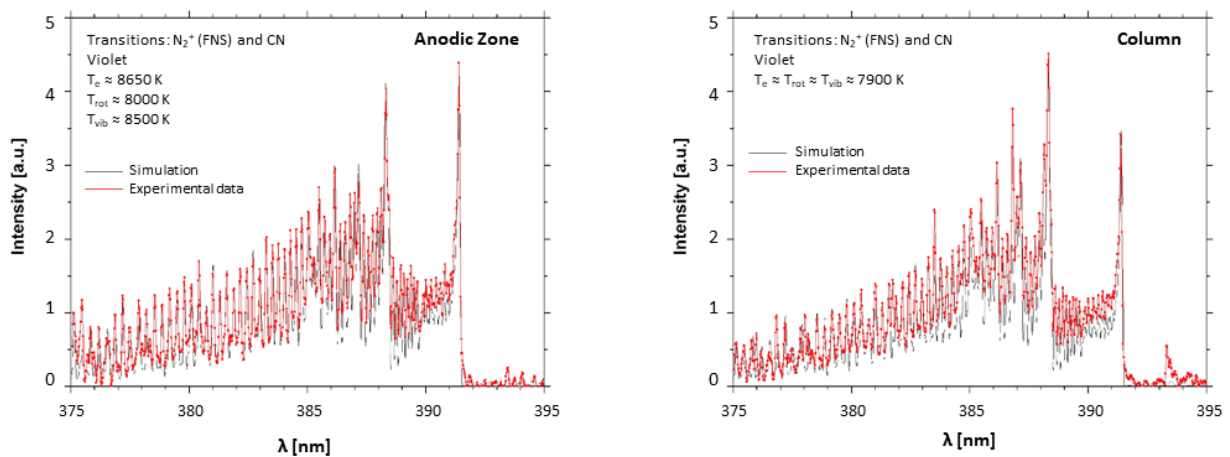


Figure 3-27 : Spectroscopie moléculaire de l'étincelle : superposition des spectres moléculaires enregistrés autour de 385 nm, et simulés par SPECAIR ;  $\tau_{arc} = 50 \mu\text{s}$  ;  $E_{arc} = 16 \text{ mJ}$  ;  $t_{gd} = 10 \mu\text{s}$  ;  $t_{exp} = 50 \mu\text{s}$ , extraite de [62].

Méthode	Type	Anode (A)	Colonne (C)	Cathode (K)
Graph. Boltzmann	$T_{ex}$ ( $r = 0$ mm) moyennée sur 10-50 $\mu$ s	3800 $\pm$ 300	6100 $\pm$ 500	4000 $\pm$ 100
Spect. moléculaire	$T_e$	8650 $\pm$ 650	7900 $\pm$ 600	-
	$T_{vib}$	8500 $\pm$ 625	7900 $\pm$ 600	-
	$T_{rot}$	8000 $\pm$ 600	7900 $\pm$ 600	-

Tableau 6 : Températures en [K] mesurées dans l'étincelle par spectroscopie moléculaire et par graphe de Boltzmann, extrait de [62].

### 3.11 Autres résultats : caractéristiques de la flamme de combustion

Pour compléter l'ensemble des mesures réalisées sur l'étincelle électrique, il est aussi indispensable de déterminer les paramètres de la flamme de combustion. Nous ne détaillerons pas l'ensemble des méthodes mises en œuvre dans ce cadre, puisqu'elles ne faisaient pas directement partie de ce travail de thèse et ont par ailleurs déjà été publiées pour différents types de métaux (cf. [62], [78]) : nous n'en donnerons que les points essentiels, dans le cas de la poudre d'aluminium.

L'émission lumineuse d'une flamme de poudres métalliques est la somme du rayonnement thermique des espèces condensées, qui peut être modélisée par la loi de Planck, et de l'émission due aux espèces en phase gazeuse résultant de la vaporisation des particules. En particulier, en présence d'aluminium, le spectre d'émission de AlO est « sensible à la température » et peut être utilisé pour mesurer la température de la phase gazeuse autour des particules.

#### 3.11.1 Mesure pyrométrique de la température des particules

La température de surface des particules métalliques durant la combustion, a été évaluée en mettant en œuvre une méthode développée par Gillard et al. reposant sur l'utilisation d'un pyromètre dichromatique [75], [109].

La température des particules est une valeur moyenne mesurée du centre de la zone d'allumage à sa périphérie : les signaux d'émission sont latéralement enregistrés et intégrés le long d'une ligne de visée entre les électrodes. Étant donné que les mesures donnent des valeurs de températures relativement constantes dans le temps (cf. Figure 3-28, extraite de [62]), pour déterminer l'évolution de la température des particules en fonction de la concentration  $c$  [ $\text{mg.L}^{-1}$ ] de poudre, les valeurs de températures du début à la fin de la première combustion (« pic 1 », sur la Figure 3-3, page 57) sont moyennées

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

dans le temps, pour chaque concentration de poudre. Toutes les poudres étudiées ont une granulométrie moyenne  $\varnothing = 25 \mu\text{m}$  et la durée de décharge d'étincelle  $\tau_{arc}$  est fixée à  $50 \mu\text{s}$  avec une énergie déposée de  $16 \text{ mJ}$ , supérieure à celle de l'EMI.

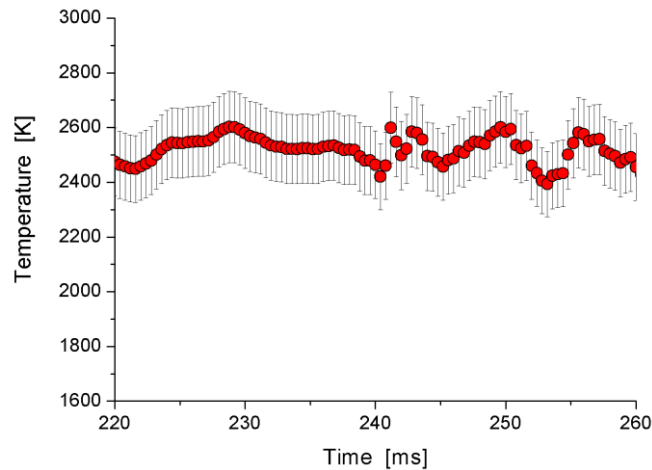


Figure 3-28 : Pyrométrie de la flamme : évolution temporelle de la température des particules d'Al ;

$c = 1000 \text{ mg.L}^{-1}$  ;  $\varnothing = 25 \mu\text{m}$  ;  $\tau_{arc} = 50 \mu\text{s}$  ;  $E_{arc} = 16 \text{ mJ}$ , extraite de [62].

Compte tenu du chevauchement des barres d'incertitudes, il semble impossible de tirer des conclusions définitives des résultats présentés sur la Figure 3-29, extraite de [62], quant à l'évolution de la température moyenne avec la concentration de poudre. Néanmoins la valeur mesurée est comparable aux températures d'explosion mesurées par Cashdollar et al. [76] dans une chambre de 20 L avec un pyromètre IR à six longueurs d'onde, qui variait entre 2400 K et 2600 K dans la même plage de concentration de poussières d'aluminium. Ainsi, lors de la combustion, le point de fusion de l'aluminium (de l'ordre de 933,4 K) est dépassé mais pas son point d'ébullition (2793 K), comme c'est le cas pour la combustion de nanoparticules d'aluminium [110].

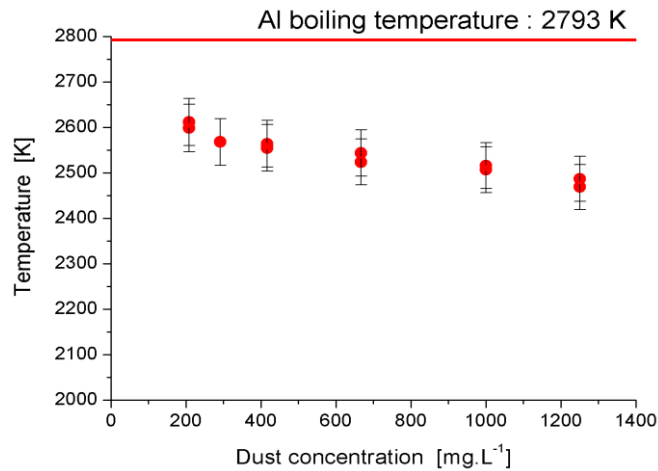


Figure 3-29 : Pyrométrie de la flamme : évolution de la température des particules d'Al en fonction de la concentration de poudre ;  $\varnothing = 25 \mu\text{m}$  ;  $\tau_{arc} = 50 \mu\text{s}$  ;  $E_{arc} = 16 \text{ mJ}$ , extraite de [62].

### 3.11.2 Mesure spectroscopique de la température de flamme

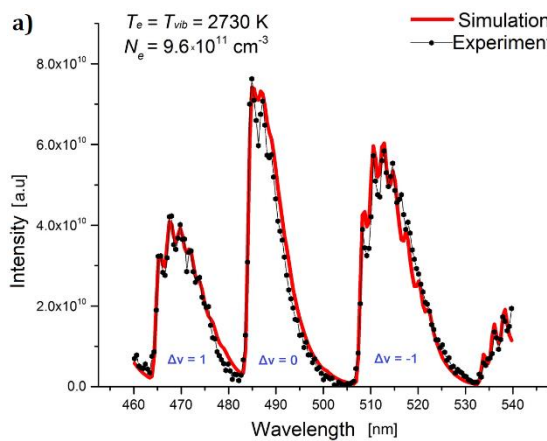
Une mesure spectroscopique de la température de la flamme a été effectuée en exploitant le spectre moléculaire du monoxyde d'aluminium (AlO), qui est un produit intermédiaire lors de la combustion de la poudre d'aluminium dans l'air [110]–[112].

Outre le spectromètre Acton de haute résolution, un second spectromètre de plus faible résolution a été utilisé spécifiquement pour cette étude. Il s'agit d'un spectromètre Ocean Optics (focale de 101,6 mm) à faible résolution spectrale (proche de 0,5 nm), permettant une résolution temporelle de 1 ms à 500 Hz de fréquence, ce qui permet d'évaluer l'évolution temporelle de la flamme qui dure environ 50 ms (cf. Figure 3-3, page 31). Le détecteur couvre une large gamme spectrale de 200 nm à 1100 nm. L'image de la flamme au point d'allumage (centre de la décharge d'étincelle) est formée à l'aide d'une lentille en quartz (longueur focale de 10 cm) et d'une fibre optique UV (diamètre de 125  $\mu\text{m}$ ) reliée à la fente d'entrée du spectromètre.

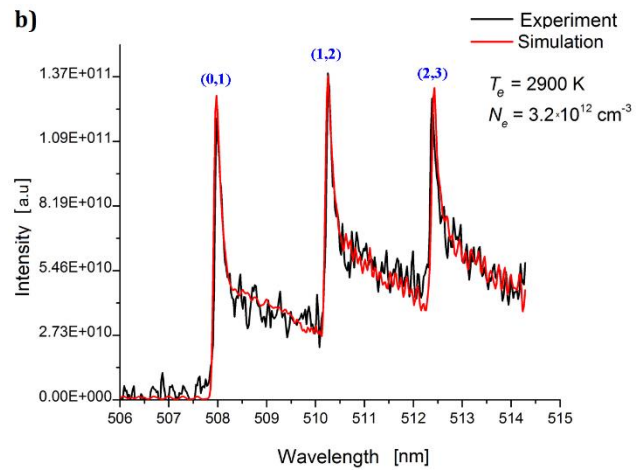
La température du gaz  $T_e$  et la densité électronique  $N_e$  au point d'allumage ont été déterminées en ajustant les raies spectrales enregistrées avec un signal simulé à l'aide du logiciel LTESpec [113], en supposant l'équilibre thermodynamique local (ETL).

La Figure 3-30 a), extraite de [62], montre un exemple de différentes bandes vibrationnelles de AlO ( $\Delta v = 1, 0, -1$ ) du système de bandes « bleu-vert »  $A^2 \Sigma^+ \rightarrow X^2 \Sigma^+$  de AlO, compris entre 460 nm et 540 nm, avec le spectromètre Ocean Optics. Tandis que le spectromètre Acton permet d'obtenir un spectre plus résolu montrant les bandes vibrationnelles de AlO ( $\Delta v = -1$ ) en équilibre quasi thermique (cf. Figure 3-30 b), extraite de [62]).

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE



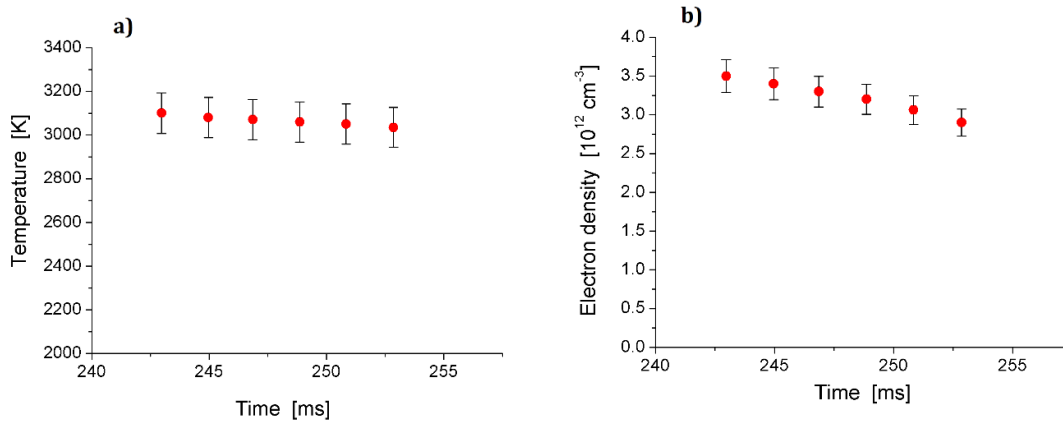
a) Spectromètre Ocean Optic ;  $t_{exp} = 100 \mu\text{s}$  ;



b) Spectromètre Acton ;  $t_{exp} = 1 \text{ ms}$  ;

Figure 3-30 : Spectroscopie de flamme avec AlO : spectres moléculaires expérimental et simulé de AlO entre 460 nm et 540 nm ;  $c = 417 \text{ mg.L}^{-1}$  ;  $\varnothing = 25 \mu\text{m}$  ;  $\tau_{arc} = 50 \mu\text{s}$  ;  $E_{arc} = 16 \text{ mJ}$  ;  $t_{gd} = 250 \text{ ms}$  (après le signal de déclenchement initial correspondant à la formation du nuage de poudre), extraite de [62].

Les évolutions temporelles de la température et de la densité électronique dans la flamme (cf. *Figure 3-31*, extraite de [62]) diminuent légèrement en raison de la dissipation d'énergie dans les zones périphériques froides.



a) Évolution temporelle de la température ;

b) Évolution temporelle de la densité électronique ;

Figure 3-31 : Spectroscopie de flamme avec AlO ;  $c = 208 \text{ mg.L}^{-1}$  ;  $\varnothing = 27 \mu\text{m}$  ;  $\tau_{arc} = 50 \mu\text{s}$  ;  $E_{arc} = 16 \text{ mJ}$ , extraite de [62].

## 3.11.3 Discussion

Les températures pyrométriques et spectroscopiques de la flamme, intégrées temporellement pendant la durée de vie de la flamme, tracées en fonction des concentrations de poudre sur la Figure 3-32, extraite de [62], sont légèrement différentes. Les températures pyrométriques correspondent à la température des particules en combustion dans le tube Hartmann. Un maximum de température est atteint à la surface des particules et la température reste proche de la température d'ébullition de l'aluminium [110]. Cependant, la température spectroscopique, qui correspond à la température des molécules de gaz (AlO), est supérieure d'environ 300 K à la température pyrométrique : il est communément admis que les températures des molécules de gaz sont supérieures aux températures des particules et sont limitées par la température de vaporisation/dissociation de l'oxyde d'aluminium autour de 3250 K [52]. Les deux températures diminuent légèrement avec la concentration de poussière en raison de l'effet de refroidissement du rayonnement et de la diffusion de chaleur vers les particules non brûlées provenant de la poussière en excès par rapport à la richesse en oxygène du milieu. Les températures spectroscopiques supérieures sont probablement plus représentatives de l'énergie thermique dans le tube de Hartmann. En effet, les monoxydes d'aluminium (AlO) sont les produits intermédiaires des réactions chimiques conduisant à la formation d'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) qui est un isolant électrique efficace, de couleur blanche, largement utilisé sous sa forme céramique et résultant donc de la combustion de l'aluminium dans l'oxygène.

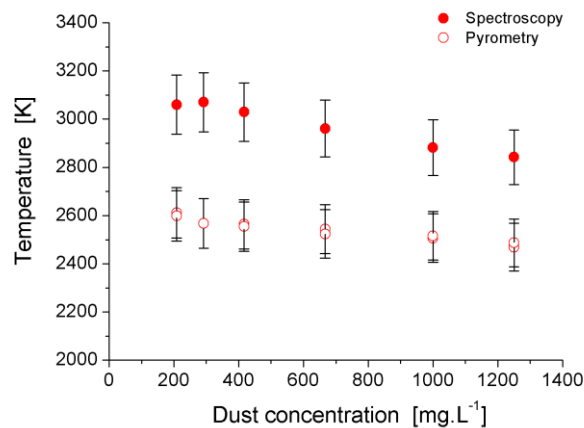


Figure 3-32 : Évolution des températures pyrométriques spectroscopiques en fonction de la concentration de poudre ;  $\varnothing = 25 \mu\text{m}$  ;  $\tau_{arc} = 50 \mu\text{s}$  ;  $E_{arc} = 16 \text{ mJ}$ , extraite de [62].



### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

L'aluminium représente le combustible principal dans le cas des poudres d'alliage d'aluminium ou d'aluminium pur. Les processus de combustion des particules, notamment la vitesse de combustion, la température maximale et la diffusion de l'oxygène, dépendent de la taille des particules [110], [111]. Des réactions chimiques résultant de la combustion de particules d'aluminium micrométriques se produisent dans une flamme entretenue par les gaz diffusés. Si la taille des particules est réduite à 10  $\mu\text{m}$ , les réactions ont lieu à la surface des particules ou à proximité de celles-ci lorsque l'oxygène est l'oxydant [110]. Des mesures résolues spatialement de la structure de la flamme, pour des particules d'aluminium micrométriques isolées en combustion dans l'air, ont été effectuées par [114] en utilisant la fluorescence plane induite par laser, mettant en évidence des gouttelettes d'aluminium en chute libre à travers le produit de combustion. L'agglomération est caractérisée par des gouttelettes sphériques de métal liquide en combustion [115].

Les températures de particules déterminées sont inférieures à la température d'ébullition de l'aluminium et supérieures à la température de fusion de l'aluminium. En conséquence, le processus de combustion consiste en une diffusion de l'aluminium à partir des liquides formés à la surface des agglomérats de particules d'aluminium solides. La réaction de l'aluminium en phase gazeuse avec l'oxygène conduit à la formation d'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) (cf. *Figure 3-33*, extraite de [62]).

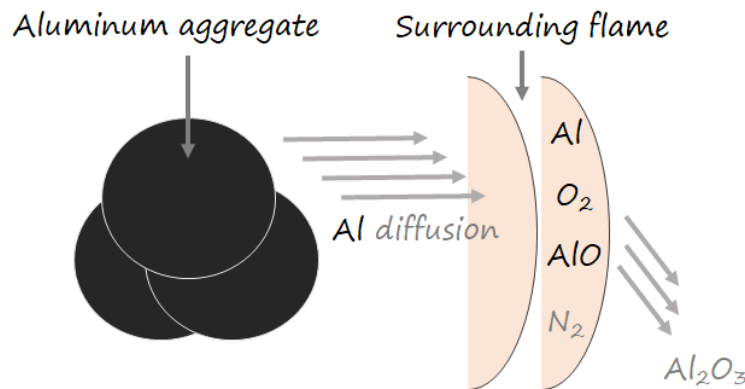


Figure 3-33 : Représentation schématique de la combustion de particules micrométriques d'aluminium, extraite de [62].

## 3.12 Conclusion et Perspectives

### 3.12.1 Conclusion

Dans cette partie, nous avons présenté l'étude complète d'une décharge éclatant entre deux électrodes en tungstène cérié, utilisée pour l'allumage de nuage de poudres, notamment métalliques, dans un tube de Hartmann. Des mesures complémentaires sur les températures de flammes pendant la combustion d'un nuage de poudre d'aluminium, ont également été réalisées. C'est la première fois, à notre connaissance, qu'une telle étude complète a été réalisée, permettant de fournir un ensemble de données cohérentes et réalistes de températures et de densités électroniques pouvant notamment être utilisé comme données d'entrée de simulation du transfert d'énergie thermique ou chimique qui initient les réactions chimiques de combustion.

L'étude spectroscopique de l'étincelle a été faite hors du tube de Hartmann, dans l'air à la pression atmosphérique. Les conditions expérimentales ont été choisies pour obtenir une bonne stabilité de la décharge et assurer la reproductibilité des mesures. Pour réduire l'impact des éventuelles instabilités, les données sont enregistrées latéralement sur la matrice de la caméra jusqu'à un total de 70 décharges pour chaque mesure avec un temps d'exposition  $t_{exp}$  fixé à 10  $\mu$ s. Une inversion d'Abel permet d'obtenir la distribution spatiale des intensités des raies spectrales et d'évaluer alors l'évolution temporelle des distributions spatiales de températures et des densités électroniques de l'axe inter-électrodes à la périphérie du plasma, durant la durée de vie de l'étincelle.

La zone centrale de la colonne correspond aux valeurs de température et de densité électronique les plus élevées, ce qui signifie que la plupart des interactions entre la décharge et les poudres métalliques se déroulent au centre de la décharge. La cathode et l'anode sont les zones les plus lumineuses et cette émission lumineuse intense se traduit par un refroidissement des espèces radiatives, en particulier au voisinage des électrodes ( $|r| \leq 0,2$  mm). Spatialement, la température et la densité électronique diminuent linéairement au-delà de 0,2 mm du centre de la décharge. À la fin de la décharge, les particules de tungstène sont projetées de la cathode à l'anode sans aucune force électrique externe, c'est pourquoi la température et la densité électronique sont élevées à la zone anodique lorsque le plasma entre en extinction ( $t = 100$   $\mu$ s). Les électrons à proximité des électrodes sont principalement produits par émission thermoélectronique de la cathodique alors que l'ionisation en cascade domine dans la colonne.

Le critère de McWhirter a montré que les zones anodique et cathodique sont hors d'ETL, alors que ce même critère indique la validité de l'hypothèse d'ETL dans le centre de la colonne. Les paramètres du plasma de la colonne peuvent donc être utilisés comme données d'entrée pour la simulation de l'inflammation de matières pulvérulentes sous la condition d'ETL.

Les températures moyennes des étincelles mesurées sont environ cinq fois plus élevées que les valeurs de température généralement choisies pour la modélisation de la

combustion. La présence d'un délai d'allumage fonction de la concentration de la poussière, semble indiquer une meilleure interaction entre l'étincelle et la poudre, synonyme d'un transfert de chaleur efficace de l'étincelle aux premières particules. Par conséquent, les interactions étincelle/poudre qui se produisent pendant le délai d'allumage ont une influence sur le développement de la flamme et doivent également être prises en compte pour les simulations. Il a été suggéré que la poudre était directement chauffée par la décharge électrique jusqu'à son oxydation et que l'enthalpie d'oxydation libérée provoquerait son inflammation ultérieure [116]–[118]. Néanmoins, il resterait à déterminer si la durée de l'étincelle et sa distribution d'énergie spatio-temporelle ont un impact significatif sur la sensibilité de la poudre à l'allumage.

#### 3.12.2 Limitations de la SOE

La SOE a été utilisée pour diagnostiquer le plasma de décharge en faisant l'hypothèse d'existence d'ETL, en particulier dans la colonne de décharge. Nous savons que dans un plasma hors d'ETL, la température des électrons est supérieure à celle des atomes. Si c'est le cas pour notre plasma de décharge, alors l'énergie thermique fournie par la décharge, notamment à travers ses électrons, pourrait être sous-évaluée. Il serait dès lors nécessaire de comprendre dans quelles conditions réelles l'existence d'ETL est effective, pour la décharge électrique, mais aussi pour les milieux plasmagènes en général.

Pour ce faire, il faudrait déterminer la température des électrons et celle des atomes par des techniques différentes qui :

- Soient indépendantes afin de comparer ensuite leurs cohérences avec des évaluations faites en situation d'ETL. En l'occurrence, il serait intéressant de comparer les calculs de densités électroniques déduites des températures d'excitation sous hypothèse d'ETL, avec des mesures directement déduites des élargissements Stark des raies spectrales. Malheureusement, les raies de tungstène sont trop fines pour pouvoir en extraire avec suffisamment de précision, la composantes Stark. Sans compter que les élargissements normalisés des raies de tungstènes ne sont pas connus avec une grande précision [22].
- Soient toutes deux non sensibles aux conditions d'ETL. C'est le cas par exemple des mesures de la température et la densité des électrons par la méthode de Diffusion Thomson (DT). C'est une technique de diagnostic laser reposant sur la diffusion des particules chargées soumises à un fort rayonnement électromagnétique, *i.e.* un rayonnement laser, et dont un des avantages est d'être insensible aux conditions d'ETL contrairement à la SOE. C'est également une méthode locale, quasiment non-intrusive, qui ne nécessite pas d'appliquer une méthode inverse (tel que l'inversion d'Abel en SOE !) pour obtenir les valeurs radiales de  $T_e$  et  $N_e$ .

Malheureusement, cette méthode n'a pas pu être appliquée aux plasmas d'étincelles étudiés, d'une part en raison de l'instabilité de la colonne (pour obtenir un signal de diffusion avec un rapport signal/bruit satisfaisant, il est nécessaire d'accumuler plusieurs dizaines d'acquisitions en chaque point de mesure), et de la présence dans le

### Partie 3 : Étude d'un plasma de décharge par SOE

plasma de gouttelettes qui perturbaient les mesures (diffusion/réflexion du rayonnement laser).

Dans la suite de ce travail, il a été choisi de transposer notre étude sur les plasmas transitoires, aux Plasmas Induits par Laser (PILs) dans deux configurations : en claquage dans un gaz d'argon et en ablation sur une cible solide de cuivre.

Notre choix s'est ainsi porté sur les PILs car ce sont des milieux plasmagènes transitoires plus stables dans leur expansion et leur forme par rapport à un système de décharge électrique. En effet, sous certaines conditions, ce type de source plasma est bien reproductible de par un meilleur contrôle de l'apport d'énergie par ajustement des caractéristiques du laser de claquage (énergie d'impulsion, temps d'impulsion, etc.) et du dispositif optique. Ce meilleur contrôle permet ainsi de générer des plasmas transitoires bien reproductibles spatialement et temporellement, permettant d'une part un accès plus aisé à la mesure par des techniques spectroscopiques, et d'autre part de disposer de forts gradients de températures et de densités sur un même dispositif expérimental.

Une des applications en plein essor de ce type de plasma, concerne les méthodes d'analyse par Spectroscopie de Plasmas Induit par Laser (LIBS : Laser-Induced Breakdown Spectroscopy). Dans ce cadre, notre objectif sera de réaliser un comparatif des techniques de DT et de SOE pour tester les conditions d'existence d'ETL en milieu plasmagène transitoire. La comparaison des différentes températures et densités électroniques obtenues, nous permettra de conclure sur les conditions réelles d'existence d'ETL dans un tel plasma et d'apprécier la validité des mesures spectroscopiques faites par la SOE de manière générale.

**Partie 4 : Étude des Plasmas Induits par  
Laser (PILs) par SOE et DT**

## 4 Étude des Plasmas Induits par Laser (PILs) par SOE et DT

### 4.1 Introduction

L'invention du laser dans les années 1960 a ouvert un nouveau et vaste domaine de production et d'étude des plasmas. En effet, dès 1962, Breech et Cross [119] ont utilisé un laser à rubis pour produire le premier Plasma Induit par Laser (PIL). De façon générale, un PIL est un plasma généré en focalisant le rayonnement pulsé d'un laser dans un gaz, un liquide ou sur une surface solide. Un PIL est de nature transitoire et l'utilisation de son émission lumineuse permet de caractériser son milieu et ses constituants élémentaires. Cette idée a donné naissance à la spectroscopie de plasma induit par laser ou en anglais Laser-Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS) qui fût pour la première fois appliquée par Debras-Guédon et Liodec [120]. La LIBS est donc l'application de la SOE à un PIL. Cette technique permet une caractérisation *in situ* de tout type d'échantillon de matière, à distance et dans un milieu hostile ou difficile d'accès. L'amélioration de la puissance des lasers pulsés, avec des durées d'impulsion allant de la milliseconde à la femtoseconde a fait croître considérablement l'intérêt de la LIBS et ses applications [121]. Par exemple, un dispositif LIBS appelé « ChemCam » a été embarqué dans le rover « Curiosity » qui a sondé le sol martien durant la mission d'exploration MSL (Mars Science Laboratory) lancée en 2011. Des dispositifs LIBS compacts et transportables sur le terrain ont aussi été développés [122].

Cependant, la LIBS repose sur les techniques de la SOE, et reste donc tributaire des hypothèses d'ETL qui ne sont pas toujours valables. De plus, la détermination quantitative de la composition d'un échantillon par LIBS nécessite des courbes de calibration préalablement établies [123]. En général, ces courbes de calibration représentent l'évolution de l'intensité des raies d'émission d'un élément particulier en fonction de sa concentration dans l'échantillon tout en fixant ou en faisant varier les concentrations des autres éléments. Cependant, des concentrations relativement élevées de l'élément particulier provoquent des phénomènes d'auto-absorption qui rompent la linéarité des courbes de calibration, ces dernières pouvant par ailleurs dépendre également de la nature des autres éléments de l'échantillon : c'est l'effet de matrice [124], [125].

La LIBS auto-calibrée ou en anglais Calibration-Free LIBS (CF-LIBS) a été introduite par Ciucci et al. [126] pour calculer les concentrations relatives des composants élémentaires d'un échantillon sans utiliser de courbes de calibration. Cependant, la CF-LIBS reste encore dépendante de l'existence de l'ETL.

Parallèlement, des méthodes de diagnostic des plasmas par des sources laser ont été développées. Il s'agit par exemple de la fluorescence induite par laser [127], [128], de la diffusion Raman [129], [130] ou de la diffusion Thomson [40], [131], [132]. L'une des techniques de caractérisation de plasma par laser la plus adaptée à la mesure de température et de densité électronique est à la diffusion Thomson. En effet, cette technique repose sur l'enregistrement de la diffusion de rayonnement par les particules chargées du milieu, et permet ainsi l'accès à une mesure locale avec une excellente résolution spatiale

(contrairement à la SOE dont les mesures sont intégrées spatialement), et une résolution temporelle suffisante pour suivre l'évolution des paramètres du plasma étudié à des instants de l'ordre de la nanoseconde ou de la femtoseconde grâce aux lasers pulsés. La DT ne dépend pas des hypothèses d'ETL, ce qui en fait un moyen efficace pour vérifier les hypothèses d'ETL faites en LIBS. Par contre, l'inconvénient majeur de la DT réside dans son caractère potentiellement intrusif dû au possible effet de chauffage du milieu plasma par le laser sonde.

C'est dans ce cadre que nous allons présenter dans la suite de ce manuscrit des PILs dans des gaz (plasmas de claquage) et sur une cible solide (plasma d'ablation) étudiés par SOE et par DT afin notamment de statuer sur les conditions d'existence d'ETL, et ainsi a fortiori juger de la validité des méthodes appliquées en LIBS.

## 4.2 Claquage et Ablation

### 4.2.1 Plasma de claquage

De façon générale, un plasma de claquage correspond à un plasma produit dans un milieu gazeux ou liquide. En particulier, nous nous intéresserons aux plasmas de claquage dans les gaz qui sont matérialisés par la formation d'un plasma transitoire centré au point de focalisation du faisceau laser (cf. *Figure 4-1*) lorsque celui-ci fournit une irradianance suffisamment élevée ( $\geq 10^9 \text{ W.m}^{-2}$  [133]). Cette irradianance représente une énergie par unité de temps et par unité de surface, souvent exprimée en  $\text{W.cm}^{-2}$  : elle peut être calculée en divisant la fluence (énergie par unité de surface [ $\text{J.cm}^{-2}$ ]) par la durée d'impulsion du laser.

Le claquage s'accompagne d'une onde de choc liée à une surpression provoquée par l'ionisation des particules présentes dans la zone de focalisation des faisceaux laser. Le claquage dans un gaz se fait d'abord par la génération des premiers électrons principalement par ionisations multiphotoniques suivie d'une ionisation en cascade [134]–[136]. L'ionisation multiphotonique intervient lorsqu'un atome absorbe simultanément plusieurs photons dont l'énergie globale est suffisante pour ioniser l'atome même si ce dernier possède une énergie d'ionisation supérieure à l'énergie des photons pris individuellement. L'ionisation en cascade est quant à elle provoquée par de nombreuses collisions inélastiques entre les atomes et les électrons qui ont déjà gagné suffisamment d'énergie cinétique par Bremsstrahlung inverse. Les atomes et ions excités dissipent ensuite ce surplus d'énergie par émission de photons dans une large gamme de longueur d'onde. Le plasma ainsi formé se dilate puis s'expand jusqu'à son extinction totale.

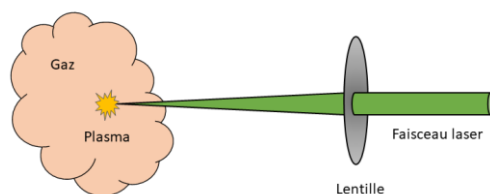


Figure 4-1 : Schéma de principe d'un plasma de claquage.

#### 4.2.2 Plasma d'ablation

Il s'agit d'un plasma produit en focalisant un faisceau laser à la surface d'une cible solide (cf. *Figure 4-2*). Une fraction de la matière solide, en interaction avec le faisceau laser focalisé, se vaporise en absorbant une partie du rayonnement. La modélisation de l'interaction laser-matière dépend, entre autre, de la longueur d'onde et de la durée d'impulsion du laser utilisé, ainsi que de la nature du matériau ablaté.

Cependant, pour des impulsions laser en régime nanoseconde et une longueur d'onde du laser dans le visible (ce qui est le cas pour notre étude), la génération du plasma se fait d'abord par absorption de l'énergie du faisceau laser par les électrons libres disponibles au sein du matériau par Bremsstrahlung inverse. En particulier, les cibles métalliques possèdent naturellement une quantité relativement importante d'électrons libres. Ensuite, les électrons diffusent cette énergie thermique dans le matériau sur des durées de l'ordre de la picoseconde [133], ce qui est largement inférieur à la durée de l'impulsion laser en régime nanoseconde. Grâce à cet effet photothermique, une partie du matériau fond et se vaporise. L'interaction de cette vapeur avec le faisceau laser encore présent provoque des ionisations multiphotoniques et une accélération des électrons libres par Bremsstrahlung inverse, entraînant une ionisation en cascade comme dans le cas des plasmas de claquage. Le plasma formé s'expand et se refroidit jusqu'à son extinction totale.

La création d'un plasma d'ablation est donc possible même lorsque la cible solide est placée dans un milieu sous vide. Cependant, la présence d'un gaz ambiant peut modifier les caractéristiques du plasma d'ablation. En effet, plus la pression du gaz ambiant est importante, plus le plasma sera confiné et plus sa densité et sa température seront élevées [18]. La nature du gaz ambiant peut également avoir une influence sur le plasma et de nombreuses études ont été faites pour caractériser l'influence des gaz tels que l'air, l'hélium ou l'argon sur les caractéristiques du plasma d'ablation [137]–[139]. Par comparaison avec un plasma d'ablation dans l'air ou dans l'hélium, les plasmas générés dans l'argon sont en général plus brillants et atteignent des températures et des densités électroniques plus élevées [140], [141].



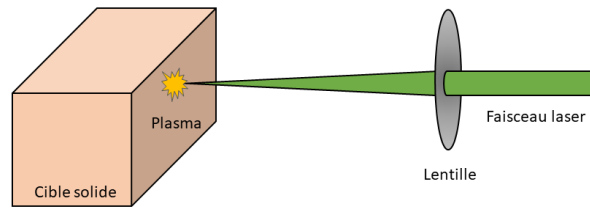


Figure 4-2 : Schéma de principe d'un plasma d'ablation.

### 4.3 Seuils de claquage et d'ablation

Le claquage et l'ablation nécessitent une irradiance minimale appelée « seuil de claquage » ou « seuil d'ablation », respectivement, qui dépendent de la nature et de la pression du gaz ou de la nature de la matière solide et de son état de surface, de la longueur d'onde du laser et de sa durée d'impulsion, de l'énergie lumineuse du laser et de sa répartition spatiale au point de focalisation [142]–[144].

Deux gaz sont majoritairement utilisés en LIBS comme gaz d'étude (et/ou de protection) : l'azote, car constituant majoritaire de la composition de l'air, et l'argon en raison de son coût raisonnable par rapport aux autres gaz rares. Pour une ablation par laser sur une cible solide, il est par exemple conseillé d'utiliser une fluence du laser inférieure au seuil de claquage du gaz ambiant.

Nous avons déterminé expérimentalement les seuils de claquage de ces deux gaz par visualisation lumineuse : pour une pression de gaz donnée, nous choisissons d'abord une énergie du laser proche du seuil de claquage, *i.e.* qui ne provoque pas un claquage systématiquement. Ensuite, nous enregistrons une cinquantaine d'images de la zone d'allumage par une caméra rapide. La probabilité d'allumage est alors calculée en faisant le rapport entre le nombre de fois où un plasma apparaît et le nombre total d'impulsions laser, soit cinquante tirs. Par ailleurs, l'énergie lumineuse absorbée par le gaz lors de la création du plasma est calculée en faisant la différence entre l'énergie lumineuse entrante dans le gaz et l'énergie lumineuse sortante non absorbée. L'irradiance correspondante est alors obtenue en divisant l'énergie absorbée par la durée d'impulsion du laser (4 ns) et par la surface transversale au point de focalisation. Cette dernière est calculée en utilisant la relation donnée par Siegman [145] qui exprime la dépendance du diamètre  $d_0$  de la zone de focalisation avec la longueur d'onde du laser  $\lambda$ , la focale  $f$  de la lentille de focalisation et le diamètre du faisceau laser avant focalisation  $D$  comme suit :

$$d_0 = \frac{2f\lambda}{D} \equiv 2\omega_0 \quad 4.1$$

où  $\omega$  est le rayon au col (« waist »).

Dans nos conditions expérimentales, pour une lentille de distance focale 10 cm, un faisceau laser de 2 cm de diamètre et de longueur d'onde 532 nm, la section du faisceau laser au point de focalisation est d'environ  $2,2 \times 10^{-7} \text{ cm}^2$  (avec  $\omega \approx 2,7 \text{ }\mu\text{m}$ ). La *Figure 4-3* montre l'évolution de la probabilité de claquage de l'argon et de l'azote pour différentes pressions et irradiances. La probabilité de claquage augmente avec la pression et l'irradiance en raison de l'augmentation de la probabilité d'ionisation par collision et de la densité d'énergie, respectivement. Il faut remarquer que le claquage dans l'argon demande moins d'énergie que dans l'azote pour une même pression. Cela s'explique en partie par le fait que, dans le cas de l'azote, une partie de l'énergie lumineuse sert uniquement à la dissociation de la liaison triple du diazote gazeux (l'énergie de dissociation du  $\text{N}\equiv\text{N}$  est égale à 9,79 eV à température ambiante).

La décroissance quasi-linéaire de l'irradiance en fonction de la pression, pour une probabilité de claquage donnée, nous permet de réaliser une approximation linéaire en fixant la probabilité de claquage. Généralement, le seuil de claquage est choisi pour une probabilité de claquage de 50 % [146], [147]. Dans ce sens, nous avons représenté sur la *Figure 4-4* les seuils de claquage de l'argon et de l'azote pour différentes pressions. À pression atmosphérique, le seuil de claquage de l'azote est de  $7,76 (\pm 0,62) \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$  soit environ deux fois plus important que celui de l'argon qui est égal à  $3,85 (\pm 0,31) \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$ , cette différence s'accroissant avec la diminution de la pression jusqu'à 0,6 bar. À titre de comparaison, pour un laser Nd : YAG à 1064 nm avec une durée d'impulsion de 7 ps, le seuil de claquage de l'azote est de  $8 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$  à pression atmosphérique [143] alors que le seuil de claquage de l'argon est de  $2,3 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$  à pression atmosphérique, pour un laser Nd : YAG à 532 nm avec une durée d'impulsion de 8 ns [148].

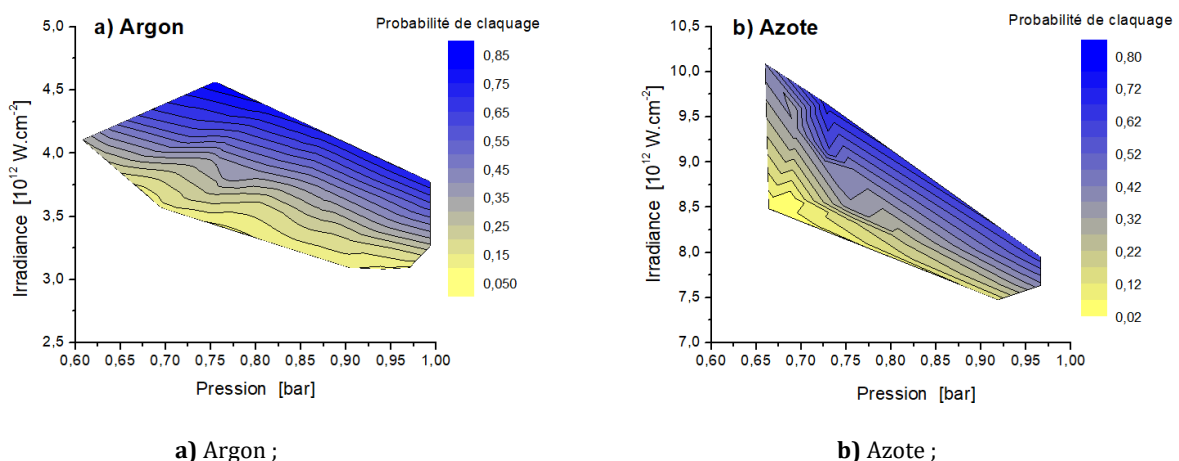


Figure 4-3 : Évolution de la probabilité de claquage pour différentes pressions et irradiances.

## Partie 4 : Étude des Plasmas Induits par Laser (PILs) par SOE et DT

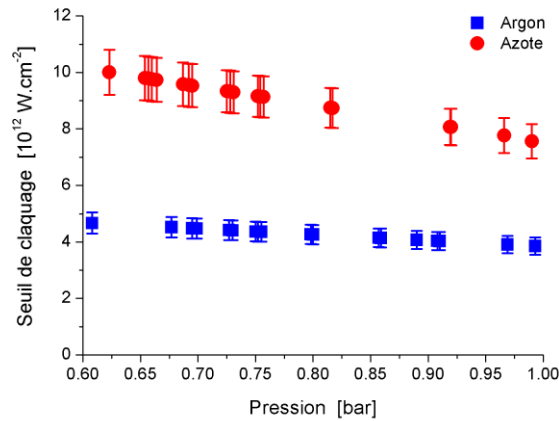


Figure 4-4 : Seuils de claquage à 50 % de l'argon et de l'azote à différentes pressions.

Le *Tableau 7* et le *Tableau 8* présentent quelques autres valeurs de seuils de claquage ou d'ablation, disponibles dans la littérature.

Laser, longueur d'onde, durée d'impulsion	Gaz, pression	Seuil de claquage, irradiance [W.cm <sup>-2</sup> ]	Référence
Nd : YAG, 1064 nm, 10 ns	Air synthétique, 1 atm	$8,2 \times 10^{10}$	Stricker et Parker, 1982 [149]
Nd : YAG, 1064 nm, 8 ns	Air synthétique, 1 atm	$2,0 \times 10^{10}$	Simeonsson et Miziolek, 1994 [150]
Nd : YAG, 532 nm, 7 ns	Air synthétique, 1 atm	$1,5 \times 10^{10}$	Simeonsson et Miziolek, 1994 [150]
Nd : YAG, 532 nm, 80 ps	Air synthétique, 1 atm	$1,8 \times 10^{13}$	Williams et al., 1983 [151]
Nd : YAG, 532 nm, 25 ps	Azote, 760 Torr	$4 \times 10^{13}$	Dewhurst, 1978 [143]

Tableau 7 : Seuils de claquage en irradiance de quelques gaz, adapté de [121].

Laser, longueur d'onde, durée d'impulsion	Cible solide, gaz, pression	Seuil de claquage, irradiance [ $\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$ ]	Référence
Nd : YAG, 532 nm, 6 ns	Cu, air, 1 atm	$1,67 \times 10^9$	Semerok et al., 2002 [152]
Ti : sapphire, 800 nm, 5 ps	Cu, air, 1 atm	$9 \times 10^{10}$	Hashida et al., 2002 [153]
Laser à impulsion collisionnelle, 620 nm, 90 fs	BaTiO <sub>3</sub> , vide	$5 \times 10^{11}$	Millon et al., 2003 [154]
Laser à impulsion collisionnelle, 620 nm, 120 fs	Silice fondue, air, 1 atm	$1 \times 10^{13}$	Von der Linde et Schüler, 1996 [155]
Nd : YAG, 1064 nm, 6,4 ns	Silice fondue, argon	$5,5 \times 10^{10}$	Galt et al., 2003 [156]

Tableau 8 : Seuils d'ablation en irradiance de quelques cibles solides, adapté de [121].

#### 4.4 Méthodes de diagnostic des PILs

##### 4.4.1 LIBS et SOE

La technique de caractérisation par LIBS découle des progrès des connaissances fondamentales sur l'émission atomique, de l'apparition des lasers pulsés et de l'amélioration des instruments de détections optiques. En effet, le principe de la LIBS consiste à créer un plasma en focalisant une impulsion laser sur une cible matérielle (solide, liquide et gaz) puis d'analyser le spectre du plasma avec un système de détection (cf. *Figure 4-5*). En d'autres termes, la technique LIBS est une application des méthodes de SOE à un PIL, le système de détection étant constitué, entre autre, d'un spectromètre et d'une caméra ICCD reliée à un ordinateur (cf. section 4.6).

En exploitant la lumière émise par un plasma, la technique LIBS permet d'étudier tout type de cible et à distance avec une installation relativement simple. L'émission du plasma est enregistrée sous forme de spectres composés d'un fond continu (Bremsstrahlung) et de raies spectrales plus ou moins isolées (désexcitation radiative). Ainsi, les positions en terme de longueur d'onde et les intensités des raies spectrales permettent de déterminer respectivement les compositions élémentaire et quantitative du plasma, et donc de l'échantillon analysé, avec une limite de détection absolue qui peut descendre jusqu'au femtogramme ( $10^{-15}$  g).

La LIBS a été particulièrement rendue populaire vers les années 1990, notamment sous l'impulsion de Cremers et Radziemski [157], et a ensuite dominé progressivement les

techniques de caractérisations usuelles telles que spectrométrie de flamme, la spectrométrie par couplage à un plasma inductif (Inductively Coupled Plasma : ICP), etc.

Cependant, cette technique très répandue connaît encore quelques faiblesses notamment liées à la validité des hypothèses d'ETL, qui ne sont pas toujours vérifiées, ou aux phénomènes d'auto-absorptions pouvant déformer les spectres d'émission, ou encore à l'état de surface qui, pour une ablation sur cible solide, peut modifier localement la composition de la cible. Par ailleurs, pour obtenir la composition quantitative d'un échantillon analysé, il est nécessaire d'utiliser des courbes de calibration établies à partir de substrats dont les concentrations élémentaires sont connues à l'avance. La nécessité d'établir de telles courbes de calibration constitue un frein pour analyser un échantillon quelconque. C'est pour s'affranchir de cette étape préalable que la LIBS auto-calibrée (Calibration-Free LIBS : CF-LIBS) a été proposée par Ciucci et al. [80]. L'analyse des spectres permet alors de connaître la composition qualitative du plasma, tandis que, pour une espèce donnée, la pente et l'ordonnée à l'origine du graphique de Boltzmann permettent de déterminer la température et la concentration de l'espèce, respectivement. Cependant, la CF-LIBS repose toujours sur les hypothèses d'ETL et néglige généralement les phénomènes d'auto-absorption du plasma considéré comme étant optiquement mince, ce qui n'est pas toujours vérifié.

Dans notre étude, les compositions élémentaires des milieux plasmagènes utilisés sont contrôlées et connues, la LIBS est donc ici principalement utilisée pour déterminer les paramètres clés des plasmas induits par laser tels que les températures d'excitation et d'ionisation et la densité électronique en utilisant respectivement les intensités des raies spectrales et leurs élargissements Stark. Aussi, nous analyserons l'impact des variations spatio-temporelles de ces paramètres sur l'établissement d'un ETL dans des plasmas transitoires.

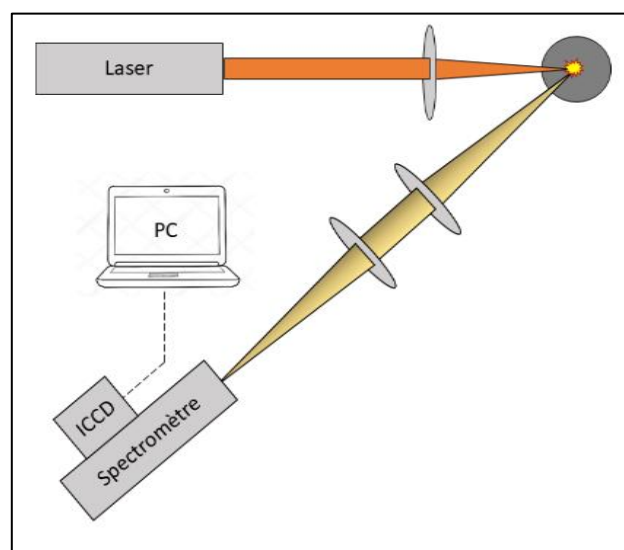


Figure 4-5 : Schéma de principe de la LIBS.

#### 4.4.2 Diffusion Thomson (DT)

Les techniques de caractérisation des plasmas utilisant des lasers sont des candidats pertinents à associer à la SOE classique qui s'avère limitée (cf. sous-section 3.12.2). Parmi ces techniques dites « laser », nous pouvons citer la spectroscopie d'absorption infrarouge par diode laser, la fluorescence induite par laser ou les diffusions laser Rayleigh et Thomson. Les caractéristiques des PILs que nous allons étudier, en terme de température, de rayonnement et de composition élémentaire, sont peu compatibles avec la spectroscopie d'absorption infrarouge par diode laser, ou avec la fluorescence induite par laser. En effet, ces deux techniques sont davantage utilisées pour le diagnostic des plasmas à basse pression contenant essentiellement des espèces moléculaires et ne permettent pas d'accéder à une mesure de la densité électronique. La diffusion Rayleigh est utilisée pour caractériser les atomes d'un plasma et ne permet pas d'accéder aux paramètres concernant les électrons libres alors que ces derniers jouent un rôle essentiel dans les processus de thermalisation des PILs.

En revanche, la diffusion Thomson (DT), c'est-à-dire la diffusion d'un rayonnement laser par des électrons libres dans un plasma, est la méthode de diagnostic laser la plus adaptée aux PILs étudiés. C'est une technique de diagnostic qui fournit un accès direct à la température électronique ( $T_e$ ) et à la densité électronique ( $N_e$ ), sans hypothèse d'existence d'ETL.

Le principe de la DT, représenté sur la *Figure 4-6*, consiste à focaliser un laser polarisé (laser sonde) dans le plasma (ici induit par laser) et de collecter le signal de diffusion dans une direction particulière avec un système de détection qui est généralement le même que celui utilisé pour la SOE classique. Les paramètres du plasma ( $T_e$  et  $N_e$ ) sont alors déduits des spectres de diffusion [42], [46].

L'un des points forts de la DT est son indépendance à l'ETL du milieu. Parmi les autres avantages de la DT, nous pouvons citer sa grande résolution spatiale due aux faibles dimensions du laser sonde focalisé et sa grande résolution temporelle due aux courtes durées des lasers pulsés utilisés (quelques ns). Cependant, la DT suppose une distribution maxwellienne des vitesses des particules diffusantes et ne permet pas de déterminer une composition qualitative d'un plasma contrairement à la SOE. Il faut aussi ajouter à ces inconvénients la faiblesse du signal diffusé due aux faibles sections efficaces de diffusion de l'ordre de  $6,7 \times 10^{-29} \text{ m}^2$ . Par conséquent, la recherche d'un rapport signal/bruit suffisant pour exploiter le spectre de diffusion, nécessite l'accumulation des signaux sur un intervalle temporel conséquent, associée à l'utilisation de fluences laser élevées, ce qui peut éventuellement perturber le plasma par chauffage de la zone sondée à travers des processus de Bremsstrahlung inverse.

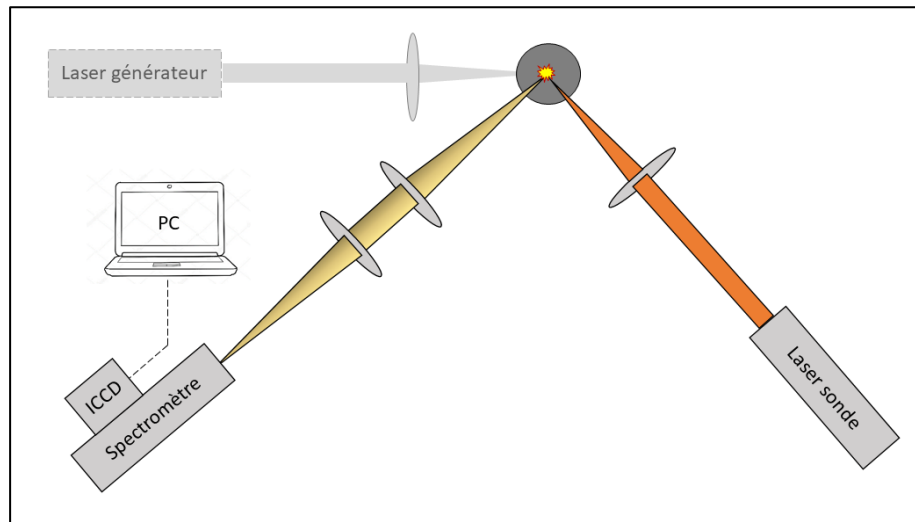


Figure 4-6 : Schéma de principe de la diffusion Thomson.

#### 4.5 Conclusion

L'utilisation de lasers de puissance pour générer des plasmas dans des milieux variés, mais aussi pour les sonder sans hypothèse d'équilibre thermodynamique local, est un moyen efficace pour valider les méthodes de diagnostics spectroscopiques appliquées en LIBS. Ces dernières sont en général plus faciles à mettre en œuvre mais nécessitent des conditions d'ETL pas toujours valides. Par ailleurs, par comparaison avec les sources de décharges électriques, les plasmas induits par lasers pulsés offrent une plus large gamme de variation de leurs paramètres, et une caractérisation temporelle mieux résolue notamment avec le développement des lasers femtoseconde et picoseconde.

#### 4.6 Dispositif expérimental

La génération d'un plasma par un laser pulsé s'effectue en focalisant un flux de photons élevé dans un petit volume de matière. En général, le plasma généré ne mesure que quelques millimètres cubes et ne dure que quelques microsecondes. Par conséquent, la génération du plasma doit se faire de façon contrôlée dans le temps et reproductible dans l'espace pour permettre de faire des mesures spectroscopiques fiables et représentatives de l'état du plasma.

Le dispositif expérimental, dont un schéma de principe et une photo sont respectivement représentés sur la *Figure 4-7* et la *Figure 4-8*, est composé de trois parties :

#### Partie 4 : Étude des Plasmas Induits par Laser (PILs) par SOE et DT

- Un dispositif de génération du plasma induit par laser.
- Un dispositif de caractérisation du plasma constitué d'un laser sonde et de son dispositif optique de mesure.
- Un dispositif de contrôle spatial et temporel de l'acquisition des mesures.

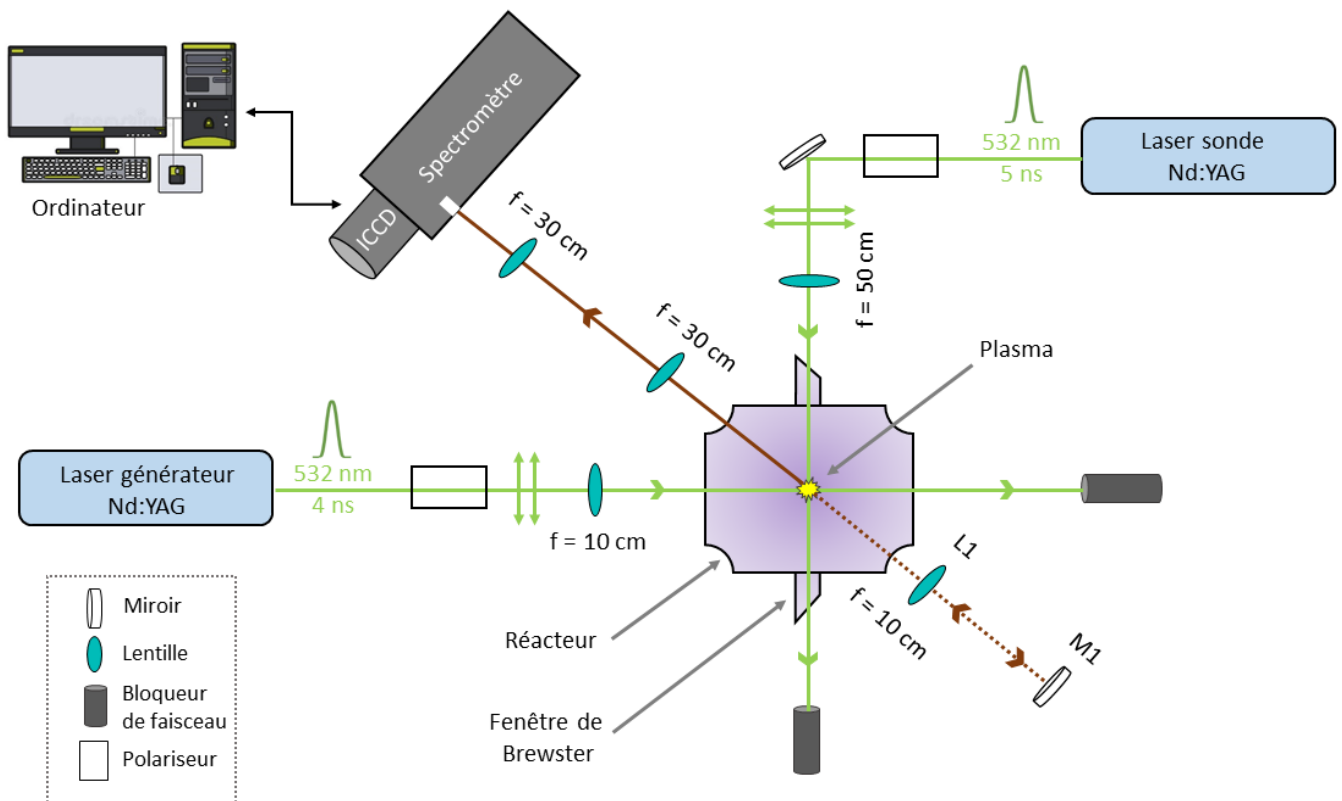


Figure 4-7 : Dispositif expérimental pour la création et la caractérisation de plasmas de claquage et d'ablation.

Le miroir M1 et la lentille L1 servent à vérifier l'auto absorption.



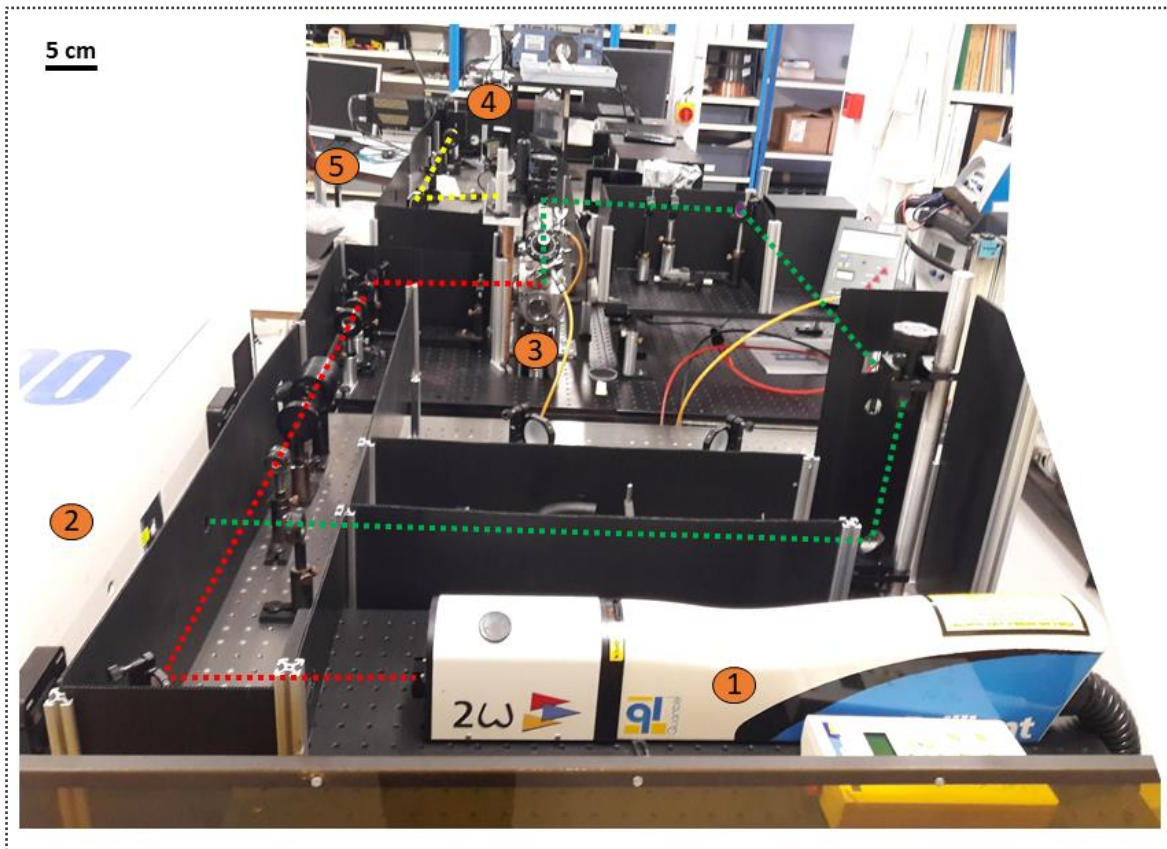


Figure 4-8 : Photo du dispositif expérimental.

(1) laser générateur avec faisceau en rouge ; (2) laser sonde avec faisceau en vert ; (3) réacteur ; (4) spectromètre avec camera ICCD ; (5) ordinateur.

#### 4.6.1 Le dispositif de génération du PIL

##### 4.6.1.1 Le laser « générateur »

La génération du plasma se fait grâce à un laser Nd : YAG (Neodymium-doped Yttrium Aluminium Garnet) ou grenat d'yttrium-aluminium dopé au néodyme ( $\text{Nd:Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ ), modèle Brilliant B de Quantel émettant à une longueur d'onde fondamentale de 1064 nm à une fréquence d'impulsion de 10 Hz. Un cristal doubleur de fréquence  $2\omega$  a été utilisé dans le cadre de ces expériences de manière à générer la première harmonique à 532 nm. À cette longueur d'onde de 532 nm choisie dans l'ensemble de cette étude, le laser délivre une énergie maximale de 200 mJ pour une durée de pulse minimale de 4 ns.

Ce faisceau laser appelé laser « générateur » est ensuite envoyé vers la chambre de réaction via un ensemble de miroirs puis focalisé au centre de l'enceinte du réacteur par une fenêtre latérale (cf. *Figure 4-8*) via une lentille plan-convexe de 10 cm de longueur focale. À

noter que le faisceau laser est polarisé grâce à un prisme Glan-Thompson couplé avec une lame quart d'onde.

Par la suite, la fluence du laser générateur au point de claquage, sera notée  $F_G$ .

#### 4.6.1.2 Le « réacteur »

La chambre d'analyse, appelée « réacteur », est une pièce en aluminium octogonale d'un volume total de 1 litre (cf. *Figure 4-9*). Ce réacteur possède 6 hublots en verre de silice fondue : les hublots d'observation du plasma sont plans tandis que les hublots de pénétration des lasers sont inclinés à l'angle de Brewster [158] par rapport à la direction de polarisation des rayons laser. L'angle de Brewster permet d'avoir une transmission totale dans le réacteur des rayons laser polarisés dans le plan d'incidence diminuant ainsi les pertes d'énergie par réflexion. Pour diminuer les multi-réflexions parasites dans le réacteur, nous avons placé des tubes cylindriques noirs absorbants au niveau des hublots.

L'utilisation d'un tel réacteur permet de contrôler l'atmosphère des plasmas sur cible solide ainsi que les pressions initiales des gaz de plasmas de claquage. À cet effet, le réacteur est relié aux réseaux de gaz par une vanne d'injection et connecté à une pompe à huile par une vanne d'éjection pour la purge sous vide. Un capteur de pression est relié au réacteur par une troisième vanne et permet de mesurer la pression du réacteur avec une précision de l'ordre du millibar. La composition du gaz est contrôlée par des rotamètres calibrés. Le réacteur et ses hublots sont capables de supporter des variations de pression allant du vide poussé à trois fois la pression atmosphérique.

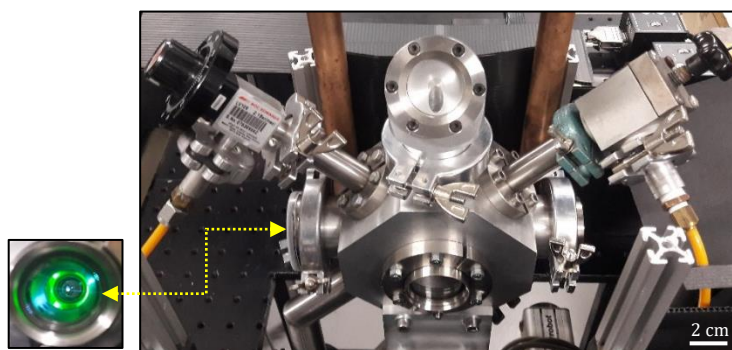


Figure 4-9 : Le réacteur avec illustration d'un plasma d'argon induit par laser Nd : YAG à 532 nm à pression atmosphérique.

## 4.6.2 Le dispositif de caractérisation du PIL

La caractérisation des plasmas induits par laser a été réalisée d'une part par diffusion Thomson et d'autre part par spectroscopie optique d'émission via le même dispositif de collection des rayonnements de diffusion Thomson et des radiations propres du plasma.

### 4.6.2.1 Le laser « sonde »

Un second laser, appelé laser « sonde », a été utilisé pour initier la diffusion Thomson. Il s'agit d'un second laser Nd : YAG, modèle Brilliant Bw de Quantel, disposant de trois longueurs d'onde d'émission : 1064 nm, 532 nm et 355 nm par utilisation d'un cristal doubleur  $2\omega$  et/ou d'un cristal tripleur  $3\omega$ . La première harmonique à 532 nm a également été choisie pour sonder le plasma. L'énergie maximale est alors de 450 mJ pour une durée de pulse de 5 ns avec un taux de répétition des impulsions d'une fréquence de 10 Hz.

Ce faisceau laser « sonde » est ensuite envoyé vers la chambre d'analyse par un système de miroirs puis focalisé au centre de celle-ci via le hublot supérieur (cf. *Figure 4-8*) à l'aide d'une lentille plan-convexe de 50 cm de distance focale. Ainsi, la taille du « waist » du laser sonde (cf. section 4.7) est d'environ  $\omega_{0S} = 44 \pm 5 \mu\text{m}$  au centre du plasma : cela permet de maintenir une fluence suffisamment faible pour éviter tout claquage supplémentaire, qui viendrait perturber les mesures. Un système composé d'une lame quart-onde couplée à un prisme polariseur de Glan-Thompson est également utilisé sur le trajet optique du laser sonde pour polariser et atténuer une partie de l'énergie incidente du laser sonde.

Par la suite, la fluence du laser sonde au point de mesure, sera notée  $F_s$ .

### 4.6.2.2 Le système de collection des rayonnements de SOE et de DT

La collection des signaux de SOE et de DT est effectuée sur le même plan horizontal que le laser générateur à  $90^\circ$  par rapport aux deux lasers. Un système optique composé de miroirs et de deux lentilles de focalisation de 30 cm de distance focale chacune, permet de reformer l'image du signal sur la fente d'entrée du système de détection avec un grandissement linéaire de 1.

Le système de détection est composé d'un spectromètre Acton SP 2750i équipé d'une caméra ICCD PI-MAX 2, système identique à celui utilisé dans l'analyse des décharges pointe-pointe (cf. sous-section 3.5.4, page 67). Comme signalé précédemment, ce dispositif permet de passer aisément du mode « spectroscopie » au mode « imagerie » sans aucune modification du chemin optique, en ouvrant totalement la fente d'entrée du spectromètre et en travaillant à l'ordre 0 du réseau (mode « miroir »), tout en bénéficiant de la grande sensibilité de la caméra intensifiée et de sa capacité à réaliser des acquisitions sur des temps très courts (jusqu'à quelques ns !).

Il est à noter que l'ensemble du chemin optique est capoté de parois sombres afin de limiter les lumières issues de réflexions ou de diffusions parasites. Les lentilles et miroirs situés sur le chemin optique des lasers générateur et sonde sont traités antireflets et peuvent résister aux impacts laser jusqu'à des fluences de  $12 \text{ J.cm}^{-2}$  et  $5 \text{ J.cm}^{-2}$ , respectivement.

#### 4.6.3 Le dispositif de contrôle de l'acquisition des expériences

Un paramétrage correct des expériences de SOE et de DT nécessite un excellent contrôle spatial et temporel de l'acquisition mais également une bonne maîtrise des énergies des lasers générateur et sonde.

##### 4.6.3.1 Le contrôle spatial de l'acquisition

La synchronisation spatiale entre le plasma créé et le faisceau de diffusion Thomson se fait grâce à un cône métallique perforé « d'alignement » (placé dans le réacteur pendant la phase de réglage) suivant les trois axes de l'espace afin d'y faire passer les deux faisceaux laser et la direction de collection du signal lumineux. Un moteur de translation pas-à-pas est utilisé pour changer de zone d'observation du plasma en modifiant la position de la lentille de focalisation du laser générateur, et donc la position du plasma par rapport au point d'observation fixé.

Lorsqu'il s'agit d'un plasma d'ablation, un second moteur de translation pas-à-pas est utilisé pour déplacer l'échantillon solide durant l'acquisition, et éviter que les impacts n'aient lieu toujours au même endroit de la surface (apparition de « cratère »), ce qui est nécessaire en cas d'accumulation de signal pour éviter un changement de forme du plasma.

##### 4.6.3.2 Le contrôle temporel des acquisitions

La création et l'étude des plasmas induits par laser se fait notamment à l'aide de lasers pulsés à hautes fréquences sur des durées d'impulsion de quelques nanosecondes. Une synchronisation temporelle entre les lasers utilisés et le système de détection est dès lors indispensable pour suivre l'évolution du plasma. Cette synchronisation temporelle se fait ici en utilisant le générateur de délais DG645 qui dispose de 5 canaux de délais ( $T_0$ ,  $A$ ,  $C$ ,  $F$  et  $G$ ), chacun pouvant générer un signal de déclenchement à durée variable (*Figure 4-10*). Même si ce générateur de délais peut fournir des impulsions de déclenchement très résolues entre  $100 \mu\text{Hz}$  et  $10 \text{ MHz}$ , nous travaillons à une fréquence de  $10 \text{ Hz}$ , compatible avec les modes de fonctionnement des lasers utilisés.

Les principaux paramètres pour la synchronisation temporelle sont : les délais respectifs des lampes flash (FL : flash lamps) et des Q-switch (QS) des deux lasers, et le délai de déclenchement de la caméra (cf. *Figure 4-10*).

- Les lampes flash du laser générateur sont choisies comme référence ( $T_0$ ) du cycle de déclenchement.
- Les délais  $A$  et  $F$  de déclenchement des Q-switch de chacun des deux lasers après leurs lampes flash (respectivement  $T_0$  et  $C$ ), sont déterminés en amont pour fixer l'énergie/l'impulsion initiale souhaitée : ils seront, par la suite, fixés à 250  $\mu$ s.
- Pour synchroniser les deux lasers, nous plaçons deux photodiodes rapides sur le chemin des faisceaux atténués et à égales distances du réacteur. Les deux signaux lus simultanément par l'oscilloscope (LeCroy wavesurfer 64Xs-A, 4 voies, bande passante 600 MHz) permettent de choisir le délai adéquat de déclenchement des lampes flash du laser sonde ( $C$ ) pour le sondage par diffusion Thomson. Ce délai doit prendre en compte les différences de trajets parcourus par les deux impulsions des lasers « générateur » et « sonde » ( $t+0,046 \mu$ s dans l'exemple de la *Figure 4-10*, où  $t$  représente le délai effectif d'observation du plasma).
- Le délai de déclenchement de la caméra ICCD est fixé par le paramètre  $G$ , qui prend en compte le trajet optique entre le réacteur et la matrice de la caméra, mais aussi les contraintes techniques inhérentes à la caméra, ce qui induit ici un retard de 0,634  $\mu$ s. Ce délai correspond au moment où le dispositif permet de détecter l'allumage du plasma.

L'acquisition du signal (spectre ou image) émis par le plasma au temps  $t_{gd}$  après le l'allumage, se fait alors en modifiant les paramètres internes de l'intensificateur de la caméra ICCD, y compris le « gate width » pour avoir le temps d'exposition  $t_{exp}$ .

Ainsi, pour suivre l'évolution temporelle du plasma par imagerie ou pour diagnostiquer le plasma par diffusion Thomson et/ou par spectroscopie optique d'émission, il suffit de varier le paramètre  $C$  (sondage par l'impulsion Thomson) sur le générateur de délais, et le couple ( $t_{gd}$ ,  $t_{exp}$ ) sur la caméra.

La faible durée de l'impulsion du laser sonde (5 ns) devant la durée de vie du plasma permet de sonder ce dernier de façon temporelle, en ajustant le paramètre  $t$ .

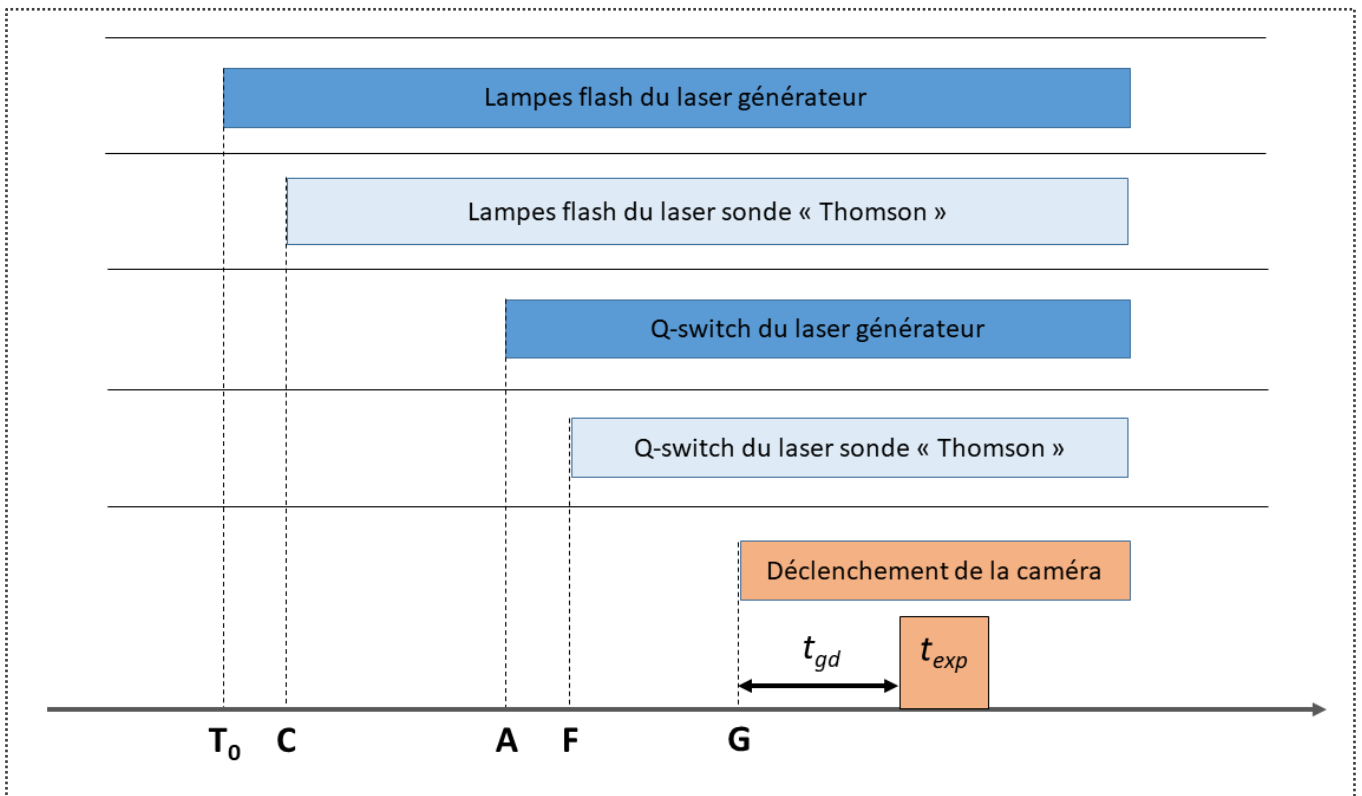


Figure 4-10 : Modèle de synchronisation du générateur de délais "DG645".  $T_0 = 0 \mu\text{s}$  ;  $A = T_0 + 250 \mu\text{s}$  ;  $C = T_0 + t + 0,046 \mu\text{s}$  ;  $F = C + 250 \mu\text{s}$  ;  $G = T_0 + 250,634 \mu\text{s}$ .

#### 4.6.3.3 Le contrôle de l'apport d'énergie des lasers

Les caractéristiques d'expansions spatiales et temporelles des plasmas induits par laser ainsi que les intensités des signaux de DT étant très sensibles aux paramétrages des énergies du laser générateur  $E_G$  et du laser sonde  $E_S$ , respectivement, il est dès lors indispensable d'avoir un bon contrôle de leurs énergies de manière à obtenir des mesures reproductibles. Or les différents composants du chemin optique tendent à absorber ou réfléchir une partie de l'énergie lumineuse issue des lasers, ces pertes pouvant atteindre 30 %. Les énergies fournies au plasma sont donc mesurées à l'entrée immédiate du réacteur où le diamètre des faisceaux est d'environ 6 mm.

Un second paramètre d'importance est le taux de variation de l'énergie des lasers autour de leurs valeurs moyennes  $\langle E \rangle$ , au cours des expérimentations (respectivement 0,08 mJ et 190 mJ à faibles énergies et hautes énergies). Ce taux de variation permet d'apprécier la stabilité temporelle des lasers, qui dépend potentiellement de la température et de l'humidité de la salle, ces dernières pouvant affecter les cristaux des lasers. Etant donné que les mesures de spectres sont faites généralement en accumulation de signal sur des

durées pouvant atteindre 400 secondes, cette stabilité temporelle sera alors un facteur important de précision des mesures spectroscopiques.

Les résultats représentés sur la *Figure 4-11* sont réalisés grâce à un détecteur thermopile laser de 10  $\mu\text{J}$  de résolution. À faibles énergies, les énergies délivrées par les lasers peuvent varier jusqu'à 40 % autour de leurs valeurs moyennes. À hautes énergies, cette variation ne dépasse pas les 10 % de la valeur moyenne. Le laser générateur est globalement plus stable temporellement que le laser sonde.

Dans le cas des analyses présentées dans ce travail, les énergies utilisées pour générer ou sonder le plasma ont des valeurs entre 10 et 20 mJ avec des variations inférieures à 10 % autour de leurs valeurs moyennes. L'impact de la variation temporelle d'énergie des lasers sur nos mesures reste donc négligeable.

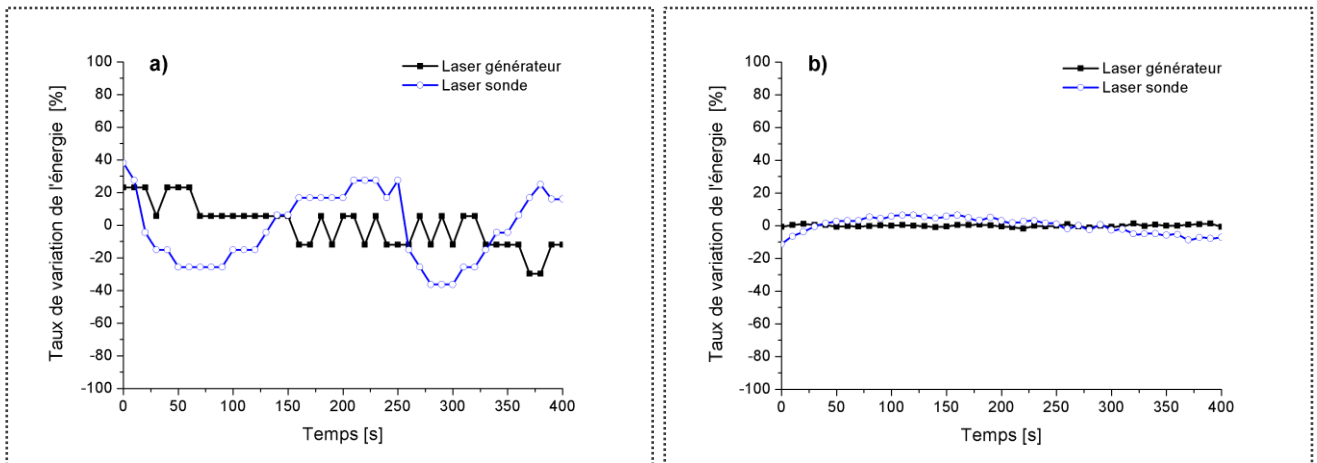
La variation d'énergie des lasers dépend également du décalage entre les signaux de déclenchement des lampes flashes et des Q-switch (QS – FL). Ce décalage temporel réglable permet de faire varier l'énergie des lasers sur deux ordres de grandeurs (*Figure 4-12*), avec un déclenchement interne du laser (mode interne) ou externe avec le générateur de délais (mode externe), mais nécessite alors d'adapter les paramètres du générateur de délais en conséquence.

Cependant, une modification de ce décalage QS – FL génère un élargissement temporel du pulse laser. Ce dernier, observé à l'oscilloscope, a une forme quasi-gaussienne (cf. *Figure 4-13 a*)), et sa durée peut être mesurée par sa largeur totale à mi-hauteur (FWHM : Full Width at Half Maximum). La *Figure 4-13 b*), montre la durée du pulse laser pour différentes énergies, et donc pour différents décalages QS – FL : on voit que la durée théorique de l'impulsion du laser générateur (4 ns) n'est obtenue que pour une énergie d'environ 58 mJ (QS – FL = 270  $\mu\text{s}$ ).

Pour des énergies du laser générateur comprises entre 10 et 20 mJ, correspondantes à nos conditions de mesures, la durée de l'impulsion laser est comprise entre 5 et 8 ns. Aussi, pour éviter la lumière parasite issue directement du laser et des photons multi-diffusées dans le plasma, ce dernier sera observable au-delà de cette durée d'impulsion. Par ailleurs, l'observation du signal de diffusion Thomson se fera avec des temps d'exposition dans l'intervalle  $8 \text{ ns} \leq t_{exp} \leq 10 \text{ ns}$  afin d'enregistrer le spectre diffusé pendant la totalité de l'impulsion sonde.

Lors de nos expériences, l'ajustement des énergies du laser « générateur » du plasma et du laser « sonde » peut se faire en modifiant la tension appliquée aux lampes flash, afin de ne pas désynchroniser temporellement les lasers par changement des paramètres du générateur de délais.

## Partie 4 : Étude des Plasmas Induits par Laser (PILs) par SOE et DT



a) Faibles énergies :  $\langle E \rangle = 0,08 \text{ mJ}$  ;

b) Hautes énergies :  $\langle E \rangle = 190 \text{ mJ}$  ;

Figure 4-11 : Stabilité temporelle des énergies des lasers.

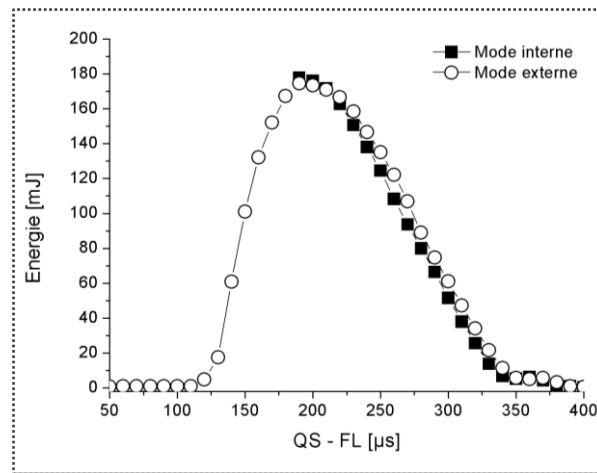
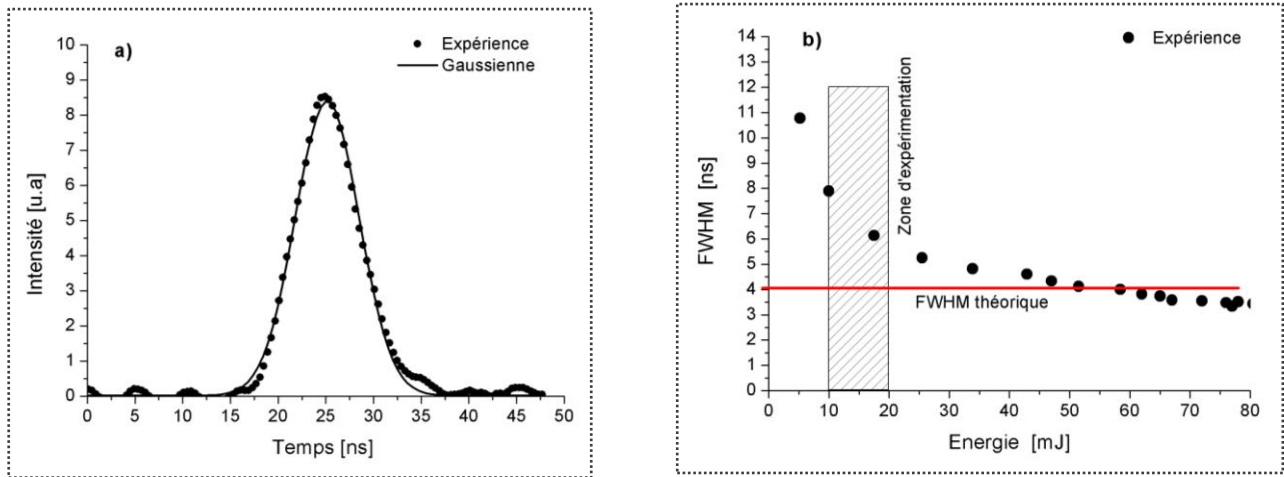


Figure 4-12 : Énergie du laser « générateur » en fonction du décalage QS-FL pour les deux modes de déclenchement.





a) Forme temporelle du pulse du laser « générateur » ;  
Décalage QS - FL = 340  $\mu$ s ;  $E_G$  = 10 mJ ; FWHM = 8 ns ;

b) Durée du pulse du laser générateur  
en fonction de l'énergie ;

Figure 4-13 : Apport d'énergie des lasers.

#### 4.6.4 Acquisition et traitement des données

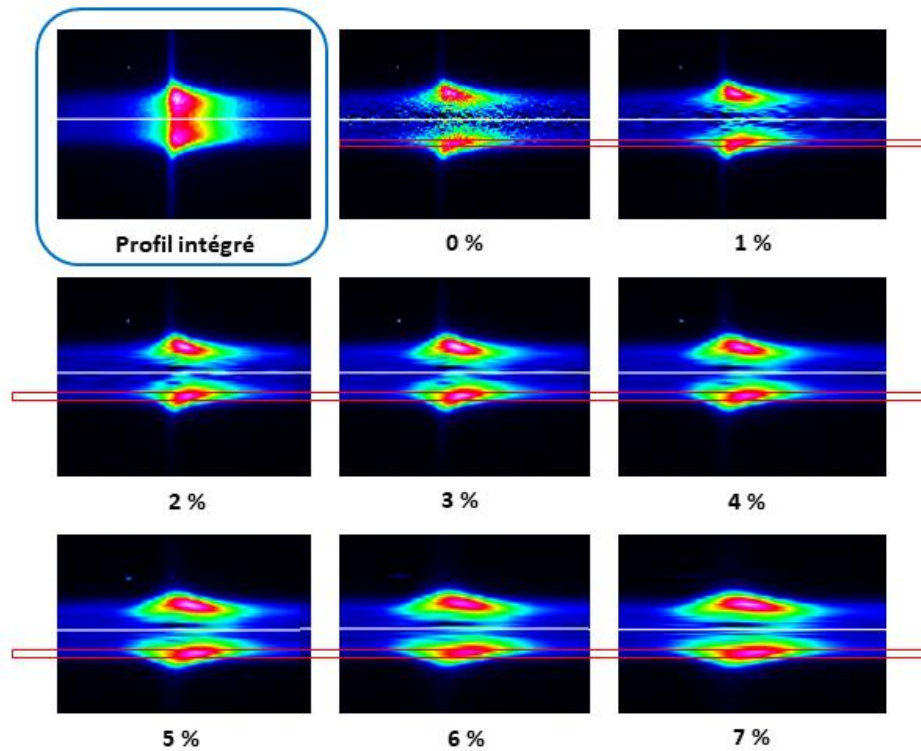
Les directions des lasers utilisés pour créer et sonder les plasmas et la direction d'observation sont représentées sur la *Figure 4-15*. La direction d'observation suivant l'axe géométrique  $Z$  est choisie à la fois pour éviter les faisceaux lasers transmis et pour collecter au maximum la lumière diffusée. En effet, pour une polarisation du laser sonde suivant l'axe  $X$ , le maximum des diffusions Thomson et Rayleigh est dirigé suivant l'axe  $Z$  où l'angle d'observation  $\theta$  est égal à  $90^\circ$  (cf. *Figure 2-5*). La polarisation du laser générateur, dirigée suivant l'axe  $Y$ , permet de réduire les réflexions du faisceau laser sur la lentille de focalisation et sur les hublots en verre de la chambre de réaction. La symétrie cylindrique du plasma permet de déterminer les valeurs radiales de ses paramètres par l'inversion d'Abel, pour une étude par SOE.

Lors des enregistrements, la durée d'ouverture de la caméra  $t_{exp}$  varie selon la technique utilisée :

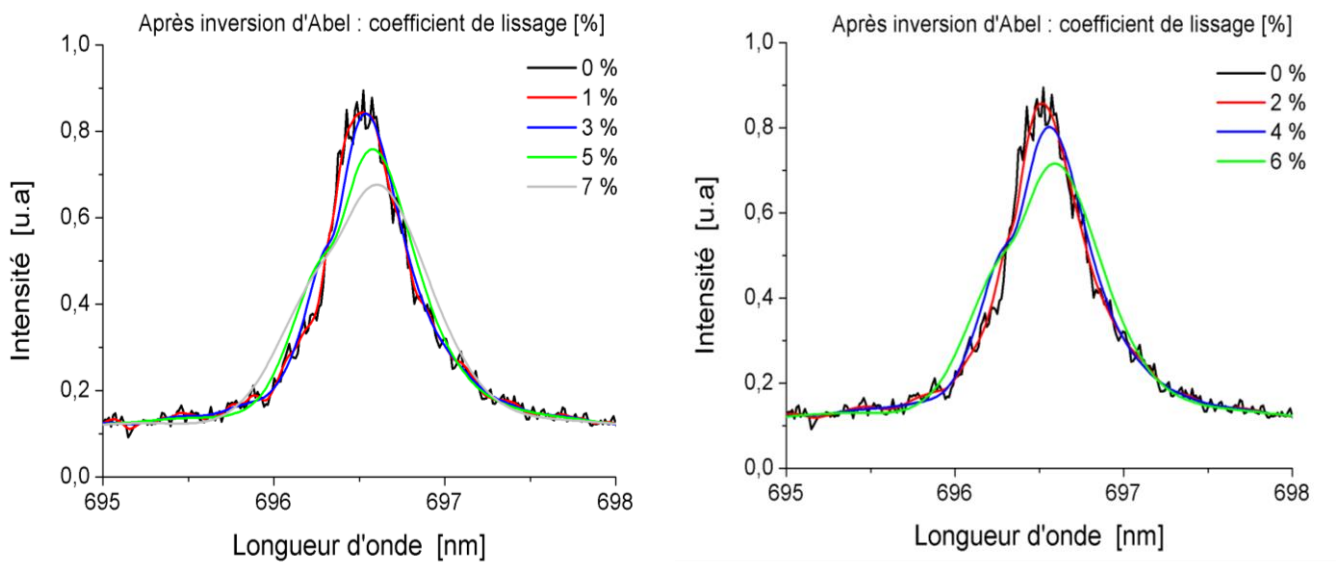
- Pour la partie SOE, la durée d'ouverture de la caméra est généralement fixée à 3 % du délai d'observation après le claquage ou l'ablation. C'est un compromis entre l'augmentation du rapport signal/bruit et la réduction des erreurs de mesure des paramètres du plasma car ces derniers peuvent varier considérablement pendant un temps très court, surtout dans les premiers instants après le claquage ou l'ablation.
- La durée d'ouverture de la caméra lors du sondage par laser (DT) est de 8 ns ; l'objectif est de collecter le maximum de signal diffusé pour une durée d'impulsion du laser sonde de 5 ns. Il faut noter que le signal de diffusion Rayleigh qui apparaît sur le spectre de diffusion est parfois si intense qu'il est nécessaire de l'éliminer en plaçant un filtre

coupe-bande devant la fente d'entrée du spectromètre, dont l'ouverture a été ajustée entre 10 et 50  $\mu\text{m}$  selon les besoins de l'expérience en termes de compromis entre résolution spectrale et sensibilité.

Le traitement des spectres de SOE s'effectue avec le logiciel OMA Voigt (Annexe 2, page 206) permettant de réaliser la procédure d'inversion d'Abel pour remonter aux répartitions radiales de rayonnement, sous réserve de symétrie cylindrique du plasma. Comme déjà signalé, le coefficient de lissage des données utilisé dans cette procédure, doit être choisi avec soin, notamment pour éviter de perdre et/ou de fausser des informations sur les profils de raies enregistrés, en raison d'un trop fort lissage. Ceci est particulièrement important dans cette étude, où l'évolution des paramètres des raies spectrales est fondamentale pour le diagnostic précis du plasma. La Figure 4-14 montre l'effet du coefficient de lissage sur l'aspect du profil de raie après inversion d'Abel. L'augmentation de ce coefficient entraîne clairement un élargissement et un déplacement de la raie, ce qui pourrait surestimer la densité électronique mesurée via l'effet Stark, par exemple. Par la suite, nous prendrons un coefficient de lissage de 3 %, afin d'éviter une altération du profil de raie.



a) Profil de la raie 696,5 nm d'Ar I dans un plasma fortement ionisé dans son centre : évolution du profil après l'inversion d'Abel en fonction du coefficient de lissage ;



b) Spectres intégrés entre les lignes 280 et 285 (schématisé par l'encadrement rouge sur la matrice ICCD ci-dessus) ;

Figure 4-14 : Effet du coefficient de lissage sur les spectres enregistrés.

La résolution spatiale des mesures réalisées par diffusion Thomson, est limitée radialement par le « *waist* » (cf. section 4.7) du laser « sonde » (de l'ordre de 90  $\mu\text{m}$ ), et axialement par la dimension de la fente d'entrée du spectromètre (quelques dizaines de  $\mu\text{m}$ ). Les spectres de DT sont exploités en utilisant le logiciel de simulation développé par le laboratoire (miroir) Zaklad Fotoniki de Cracovie (Annexe 3, page 207).

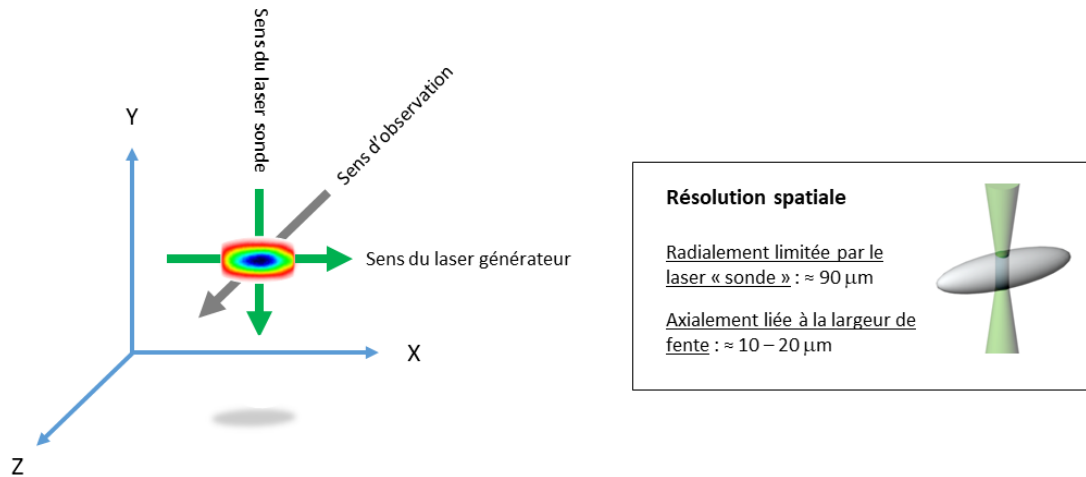


Figure 4-15 : Géométrie de création, de sondage et d'observation du plasma.

#### 4.7 Stabilisation spatiale du plasma

La stabilité spatiale des zones d'allumages est un caractère important pour limiter les incertitudes de mesures lors de l'accumulation de spectres dont l'objectif est généralement d'augmenter le rapport signal/bruit. Lorsque le faisceau laser utilisé pour générer le plasma est stable en intensité, une autre source d'instabilité du plasma peut être liée au système de focalisation. Pour un faisceau laser pulsé, spatialement et temporellement gaussien, focalisé avec une lentille convergente de focale  $f$  et de diamètre  $D$  du faisceau avant focalisation, le rayon au point de focalisation, communément appelée « *waist* » et noté  $\omega_0$ , a été définie par Siegman [145] comme :

$$\omega_0 = \frac{f\lambda}{D} \quad [\text{m}] \quad 4.2$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde du laser à focaliser [m].

La diminution de  $\omega_0$  entraîne une réduction de la section du laser et donc une augmentation de la fluence du laser focalisé, ce qui a pour effet de limiter les fluctuations de

la position du point de création du plasma. Afin de réduire  $\omega_0$ , nous avons choisi d'augmenter  $D$  en utilisant un extenseur de faisceau composé d'une lentille divergente de focale  $f_1 = -3$  cm et d'une lentille convergente de focale  $f_2 = 10$  cm, en plus du système de focalisation simple composé d'une lentille convergente de focale  $f = 10$  cm. Si les lentilles ( $f_1$ ) et ( $f_2$ ) sont séparées de  $f_1 + f_2 = 7$  cm, alors le diamètre du faisceau  $D$  est multiplié par un facteur  $\frac{|f_1|}{f_2} = 3,33$ .

Nous avons utilisé ces deux dispositifs de focalisations (cf. *Figure 4-16*) pour créer des plasmas de claquages dans l'argon à pression atmosphérique. Pour une même énergie du laser générateur  $E_G = 10$  mJ, le plasma obtenu avec la focalisation simple présente une instabilité de son point de formation (cf. *Figure 4-17 a*). Ceci s'explique par l'étendu de la zone où la probabilité de formation du plasma reste importante, par conséquent, il se produit des claquages à des points différents. Cependant, lorsque le plasma est généré en ajoutant l'extenseur de faisceau, celui-ci devient beaucoup plus stable spatialement et plus reproductible (cf. *Figure 4-17 b*). L'instabilité spatiale du plasma, avec une focalisation simple, peut passer inaperçue lorsque les mesures sont intégrées, *i.e.* une sommation de plusieurs plasmas dont le résultat pourrait sembler plus stable qu'une série de plasmas pris séparément (cf. *Figure 4-17*), alors qu'une instabilité réelle du plasma peut entraîner des erreurs de mesure relativement importantes sur la variation spatiale de ses paramètres mesurés.

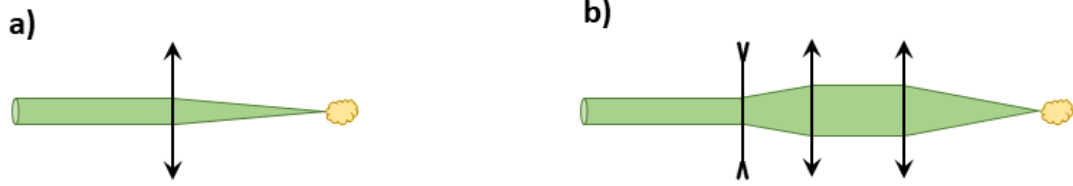
Afin de confirmer l'amélioration de la reproductibilité spatiale du plasma, nous avons représenté sur la *Figure 4-18*, l'évolution de l'intensité lumineuse au centre des plasmas successifs ( $Y = 0$  mm), en fonction de la position spatiale  $X$ . Il apparaît clairement que le plasma est instable pour la focalisation simple, et significativement plus stable lors de l'emploi de l'extenseur de faisceau faisant diminuer  $\omega_0$ .

En effet, une diminution de  $\omega_0$  par un facteur donné, fait augmenter la fluence par ce facteur au carré, et le plasma ainsi créé devient plus brillant avec une intensité lumineuse relativement plus importante. La focalisation avec un extenseur de faisceau permet donc de réduire drastiquement les fluctuations spatiales et lumineuses du plasma et ce système de focalisation est, par conséquent, choisi et intégré au dispositif expérimental, à la fois pour générer des plasmas de claquage et d'ablation.

La stabilité du laser générateur est un facteur important pour créer et caractériser des PILs. Dans ce sens, l'optimisation du système de focalisation des flux de photons du laser générateur nous a permis de pouvoir générer des plasmas suffisamment stables et reproductibles dans le temps et dans l'espace. Cette optimisation des conditions de génération du PIL, qu'il s'agisse d'une ablation ou d'un claquage, permet d'augmenter significativement la précision des mesures spectroscopiques.

Par la suite, nous fixerons l'origine des  $X$  au point de claquage initial : c'est au niveau de ce point que sera réalisé quasiment l'ensemble des études qui seront présentées par la suite.

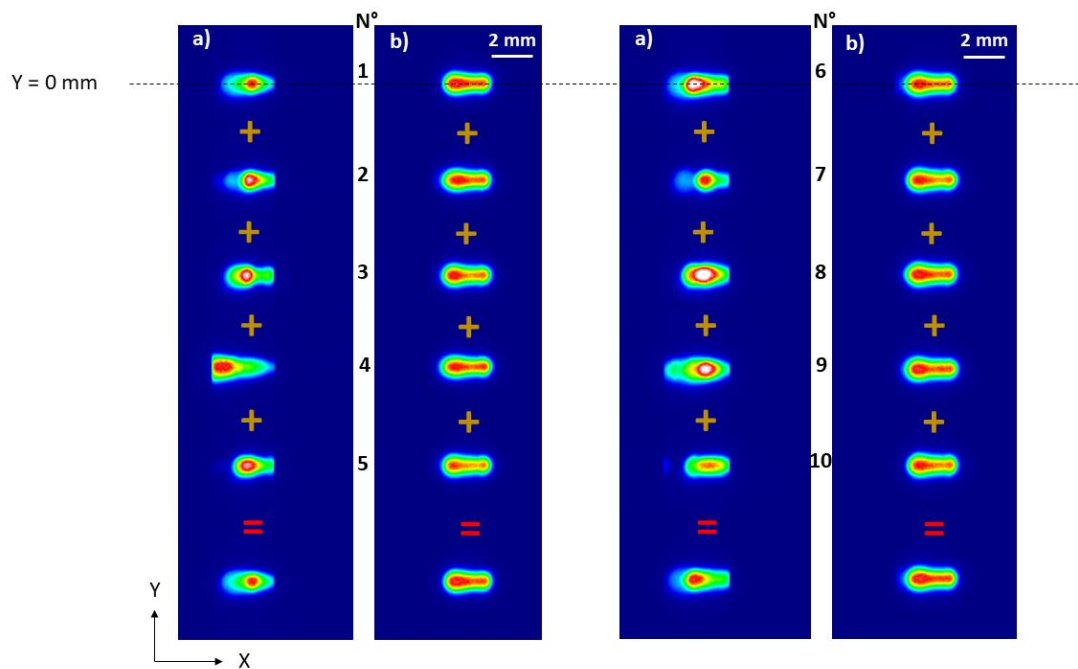
Partie 4 : Étude des Plasmas Induits par Laser (PILs) par SOE et DT



a) Focalisation simple ;  $D = 6 \text{ mm}$  ;  $\omega_{0G} \approx 8,8 \pm 0,9 \text{ } \mu\text{m}$  ;

b) Focalisation avec expandeur de faisceau ;  
 $D = 20 \text{ mm}$  ;  $\omega_{0G} \approx 2,7 \pm 0,3 \text{ } \mu\text{m}$

Figure 4-16 : Stabilisation spatiale du plasma ;  $\lambda = 532 \text{ nm}$ .



a) Focalisation simple ;  $F_G = 4,1 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ;

b) Focalisation avec expandeur de faisceau ;  
 $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ;

Figure 4-17 : Plasma de claquage dans l'argon à pression atmosphérique ;  $t_{gd} = 500 \text{ ns}$ .

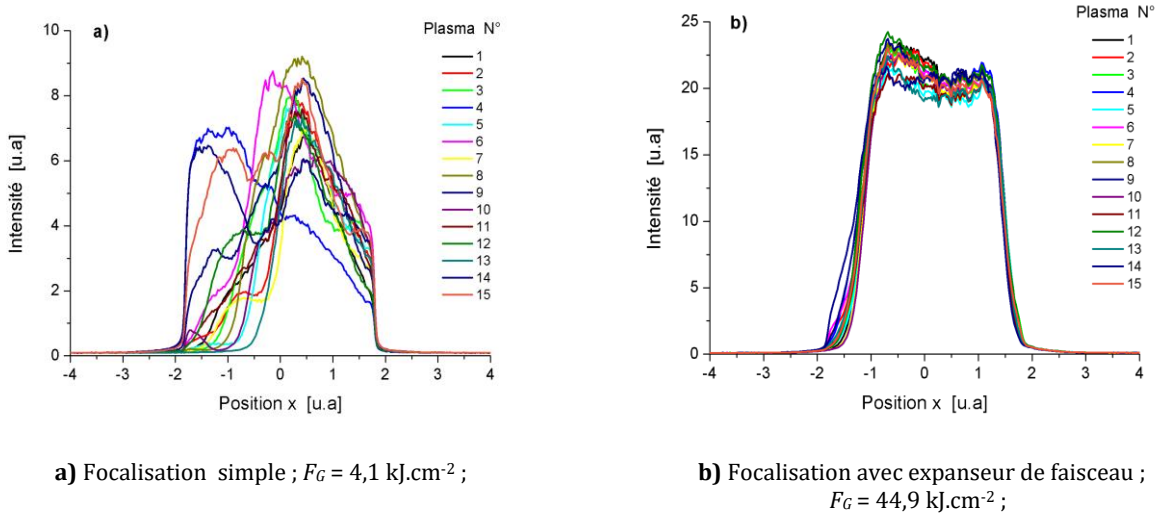


Figure 4-18 : Intensité des plasmas successifs en fonction de la position spatiale  $X$  ;  $Y = 0 \text{ mm}$  ;  $t_{gd} = 500 \text{ ns}$ .

## 4.8 Étude du plasma d'argon

### 4.8.1 Introduction

L'argon est l'un des gaz les plus utilisés dans l'étude des PILs. Ce gaz noble peut souvent servir de gaz de protection [34], [141], [159], [160] pour éviter les phénomènes d'oxydation notamment lors d'une ablation sur des cibles solides ou pour augmenter l'effet de confinement dans les plasmas de claquage [141], [161], [162]. L'émission de l'argon peut également être utilisée pour sonder le plasma par SOE par exemple [34], [163].

Malgré cette popularité de l'argon, quelques zones d'ombre subsistent encore à l'heure actuelle notamment sur la répartition de l'énergie thermique entre les espèces atomiques ou la connaissance précise des paramètres d'élargissements Stark de certaines raies d'argon nécessaires par exemple dans le cadre d'analyses LIBS. L'étude directe du plasma d'argon que nous allons effectuer dans cette partie vise ainsi à apporter des indications sur la concordance des résultats issus de deux techniques de caractérisation différentes telles que la SOE et la DT pour déterminer les paramètres du plasma.

Le plasma d'argon est généré par le laser Nd : YAG à 532 nm dans la chambre de réactions remplie d'argon pur à pression atmosphérique (1,013 bar). Le système de focalisation du laser générateur décrit à la section 4.7 a été utilisé. La fluence du laser générateur est fixée à  $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$  (énergie du laser générateur :  $E_G = 10 \text{ mJ}$  par impulsion). L'irradiance correspondante est de  $11,22 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$ , ce qui est supérieur au seuil de claquage de l'argon à pression atmosphérique et dans nos conditions expérimentales (environ  $4 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$ ). L'objectif du choix d'une telle fluence est de créer de façon certaine

un plasma sans pour autant apporter un excédent d'énergie au plasma via le laser générateur. En effet, l'interaction du laser générateur avec le plasma créé peut induire des phénomènes d'absorption qui peuvent échauffer le milieu ou déplacer l'étincelle du point de focalisation vers la lentille de focalisation [164]. Un tel déplacement de la zone de focalisation du plasma peut affecter la dynamique de sa création, par exemple en augmentant la taille de sa « plume » dans le cas d'une ablation laser.

Comme expliqué précédemment, le générateur de délais nous permet de synchroniser temporellement la génération du plasma avec le système d'imagerie et de spectrométrie avec une résolution de l'ordre de la nanoseconde.

#### 4.8.2 Évolution du plasma d'argon par imagerie

La *Figure 4-19* montre l'évolution de la forme du plasma d'argon depuis 10 ns après sa création jusqu'à son extinction, après environ 20  $\mu\text{s}$ . Le plasma est caractérisable par spectroscopie depuis son ignition jusqu'à un délai de 10  $\mu\text{s}$  avec une émission relativement intense. En général, le développement de la plume de plasma débute par une petite étincelle qui s'étend avec le refroidissement des espèces excitées et le transfert de l'énergie vers les couches adjacentes. L'expansion du plasma, qui s'accompagne d'une onde de choc [165], [166], est plus rapide dans la direction du laser générateur [17], [166] et la plume de plasma remonte ainsi vers la lentille de focalisation (direction  $X$ ). Par conséquent, le plasma est de forme allongée jusqu'à environ 4  $\mu\text{s}$  puis se réduit dans la même direction. Il passe ensuite par une forme sphérique avant de s'allonger dans la direction perpendiculaire au laser générateur (direction  $Y$ ) jusqu'à l'extinction totale.

Les différences de vitesses d'expansion dans l'espace sont confirmées par la *Figure 4-20* qui représente les vitesses d'expansion du plasma d'argon dans les directions  $X$  et  $Y$  en fonction du temps, après le passage du laser générateur. Nous avons mesuré ces vitesses d'expansion en déterminant la variation de la position de la limite externe du plasma en fonction du temps, dans les directions  $X$  et  $Y$ . Initialement, la vitesse d'expansion est d'environ 780  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  (supersonique) suivant l'axe  $X$  contre 280  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  (subsonique) suivant l'axe  $Y$ . Cependant, les vitesses d'expansion s'équilibrent après environ 10  $\mu\text{s}$ , lorsque la surpression dans le plasma est relativement faible. Il faut remarquer que la vitesse d'expansion du plasma d'argon est constante jusqu'à 200 ns puis décroît dans toutes les directions. L'ouverture de la fente d'entrée du spectromètre ne permet pas de voir la limite du plasma entre 400 ns et 2  $\mu\text{s}$  (zone hachurée de la *Figure 4-20*).

À titre de comparaison, les vitesses dans la direction  $X$  de l'onde de choc d'un plasma généré dans l'air par un laser Nd : YAG à 1064 nm, mesurées par Harilal et al. [166], sont supérieures à 25  $\text{km}\cdot\text{s}^{-1}$  dans les 10 premières nanosecondes après le passage du laser générateur. La vitesse diminue ensuite jusqu'à atteindre les 300  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  vers 7  $\mu\text{s}$ .

Il existe donc une grande différence entre la vitesse d'expansion du plasma et celle de son onde de choc, surtout dans les 10 premières nanosecondes après le claquage. Ces vitesses respectives semblent ensuite converger vers des vitesses soniques, puis subsoniques avec le refroidissement du plasma.



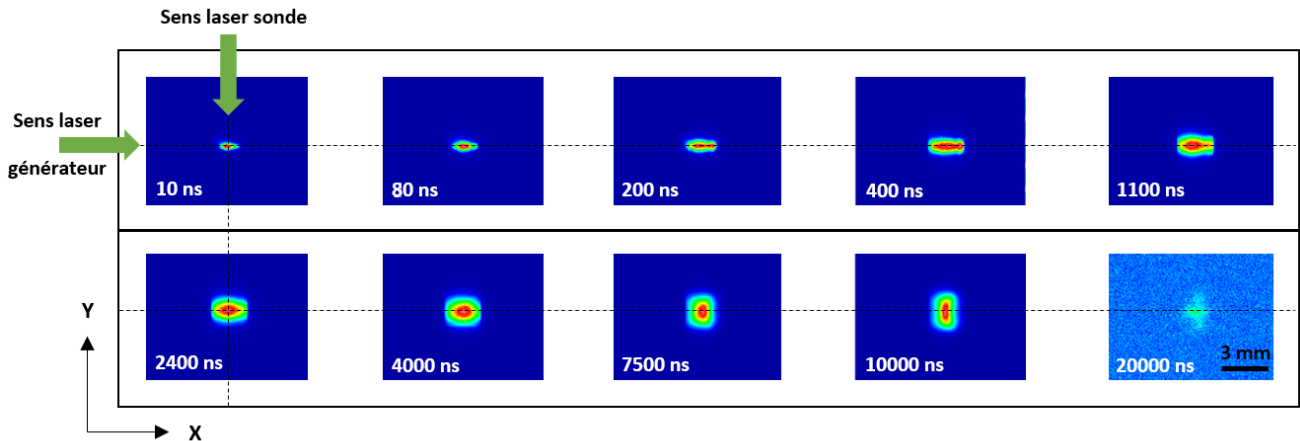


Figure 4-19 : Évolution spatio-temporelle de la plume de plasma d'argon ;  $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ;  $t_{exp} = 3 \%$  du délai.

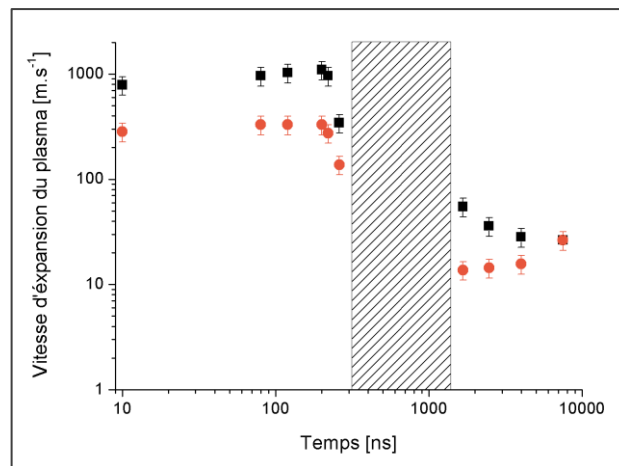


Figure 4-20 : Vitesse d'expansion du plasma d'argon dans les axes X (■) et Y (●) en fonction du temps ;  $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .

#### 4.8.3 Mesure des paramètres du plasma d'argon par SOE

Les paramètres du plasma sont déterminés en exploitant l'émission lumineuse de ce dernier. Il s'agit essentiellement de la température d'excitation des espèces atomiques et de la densité électronique, déterminées à partir des raies d'émission particulières choisies en fonction de la connaissance de leurs paramètres spectroscopiques tels que les probabilités de transition  $A_{ul}$  ou les élargissements Stark  $\Delta\lambda_s$ . Étant donné que les mesures d'intensités lumineuses sont intégrées spatialement suivant la direction d'observation et que le plasma peut être considéré comme de symétrie cylindrique suivant l'axe X (cf. Figure 4-19), une procédure d'inversion d'Abel a été appliquée pour toutes les raies utilisées. La répartition

radiale des paramètres du plasma est alors déterminée à partir de la répartition radiale des raies d'émission. Une calibration en énergie est réalisée pour toutes les raies utilisées (cf. sous-section 3.5.6). Le réseau de diffraction et la taille de l'ouverture de la fente d'entrée du spectromètre sont respectivement  $1200 \text{ traits.mm}^{-1}$  et  $e_{spect} = 30 \text{ }\mu\text{m}$ .

#### 4.8.3.1 Spectres d'émissions du plasma d'argon

Les spectres d'émission de quelques raies d'Ar I et d'Ar II au centre du plasma, sont représentés sur la *Figure 4-21* et la *Figure 4-22*, respectivement, entre 190 ns et 1100 ns. L'intensité des raies d'Ar I augmente dans le temps au moins jusqu'à 1100 ns alors que celle des raies d'Ar II décroît dans le temps. Cela s'explique principalement par les processus de recombinaison à trois corps qui font disparaître l'argon ionique Ar II au profit de l'argon neutre Ar I. Cependant, l'émission des raies d'Ar I atteint un pic d'intensité avant de décroître avec le refroidissement du plasma jusqu'à son extinction. Les raies d'Ar I apparaissent pendant plus longtemps et sur une plus grande distance depuis le cœur du plasma et permettent donc une caractérisation spatio-temporelle plus large. Le fond continu qui représente la ligne de base des spectres d'émissions et issu principalement du rayonnement de freinage des électrons décroît dans le temps. Les raies d'émission relativement intenses et spectralement isolées sont utilisées pour caractériser le plasma.

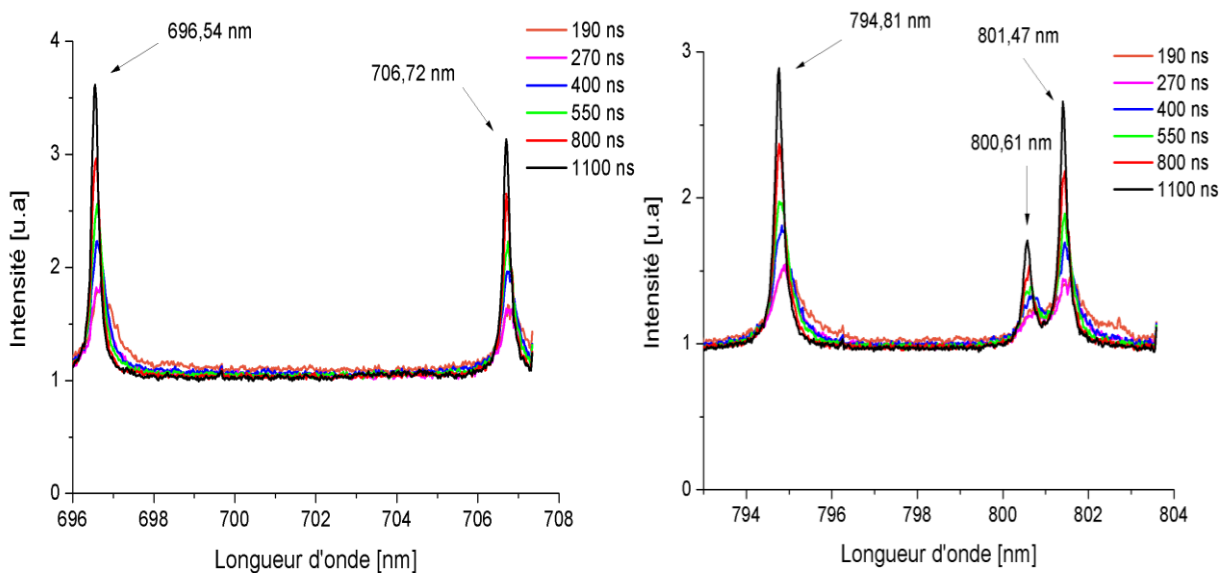


Figure 4-21 : Spectres d'émission (intégrés en  $Z$ ) de quelques raies d'Ar I en fonction du temps ;  $X = 0 \text{ mm}$  ;  $Y = 0 \text{ mm}$  ; Réseau de  $1200 \text{ traits.mm}^{-1}$  ;  $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .

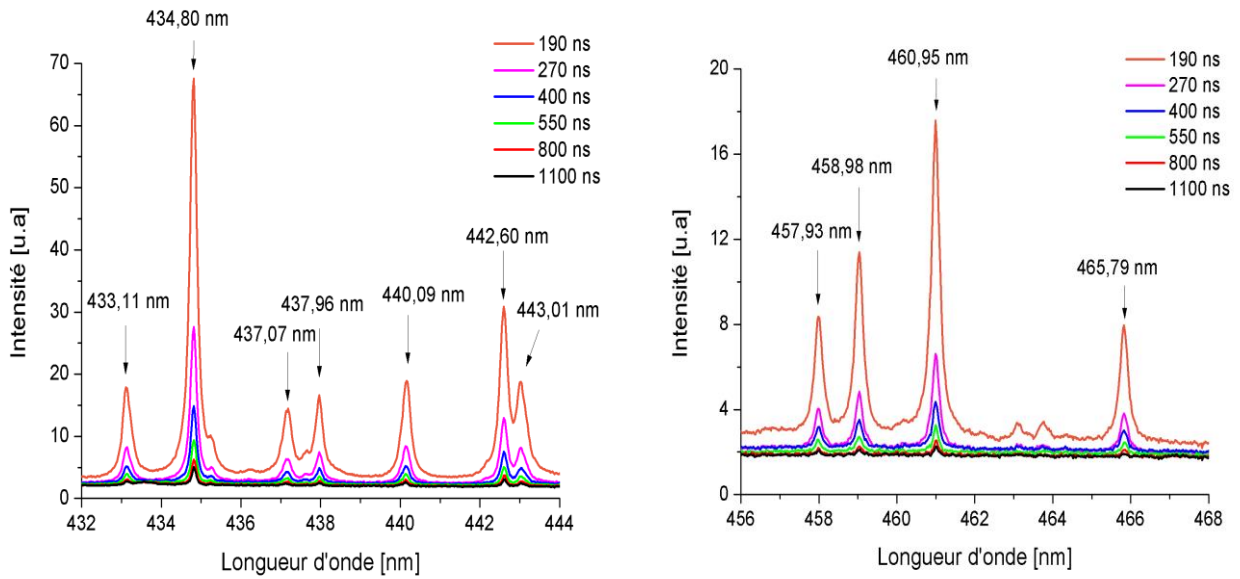


Figure 4-22 : Spectres d'émission (intégrés en  $Z$ ) de quelques raies d'Ar II en fonction du temps ;  $X = 0$  mm ;  $Y = 0$  mm ; Réseau de 1200 traits.mm<sup>-1</sup> ;  $F_G = 44,9$  kJ.cm<sup>-2</sup>.

#### 4.8.3.2 Mesure de température d'excitation par graphe de Boltzmann

Lorsque l'équilibre d'excitation suit la relation de Boltzmann (cf. *équation 1.24*), la température d'excitation  $T_{ex}$  des espèces dans un même niveau d'ionisation peut être déterminée en traçant le graphe de Boltzmann (cf. *équation 2.23*). Les espèces ciblées pour l'argon sont Ar I et Ar II, les données spectroscopiques des raies spectrales utilisées sont données respectivement dans le *Tableau 9* et le *Tableau 10* [2].

La *Figure 4-23* représente deux exemples de graphes de Boltzmann pour Ar I et Ar II au centre du plasma ( $r = 0$  mm). La variation des valeurs des énergies du niveau de départ  $E_u$  est plus importante pour Ar II (entre 19 et 21,5 eV) que pour Ar I (entre 13 et 13,4 eV). Par conséquent, la précision de la mesure de température d'excitation est meilleure pour Ar II. En effet, les coefficients de corrélations linéaires sont en moyenne proches de 0,9 pour Ar II contre 0,7 pour Ar I. L'obtention d'une droite de Boltzmann bien définie et passant par toutes les barres d'erreur, indique l'existence d'un équilibre d'excitation pour les deux espèces considérées, dans leurs états d'ionisations respectifs.

Partie 4 : Étude des Plasmas Induits par Laser (PILs) par SOE et DT

Espèce	$\lambda_{ul}$ [nm]	$g_{ul} \times A_{ul}$ [ $10^7 \text{ s}^{-1}$ ]	$E_l$ [eV]	$E_u$ [eV]	Erreur sur $A_{ul}$
Ar I	696,54	1,9	11,54	13,32	B
Ar I	706,72	1,9	11,54	13,30	B
Ar I	738,39	4,2	11,62	13,30	B
Ar I	763,51	12,2	11,54	13,17	B
Ar I	794,81	5,58	11,72	13,28	B
Ar I	800,61	2,4	11,62	13,17	C
Ar I	801,47	4,6	11,54	13,09	B

Tableau 9 : Données spectroscopiques des raies d'Ar I utilisées ; Erreur sur  $A_{ul} \leq 5\%$  (A) ; Erreur sur  $A_{ul} \leq 10\%$  (B) ; Erreur sur  $A_{ul} \leq 25\%$  (C).

Espèce	$\lambda_{ul}$ [nm]	$g_{ul} \times A_{ul}$ [ $10^7 \text{ s}^{-1}$ ]	$E_l$ [eV]	$E_u$ [eV]	Erreur sur $A_{ul}$
Ar II	434,80	93,6	16,64	19,49	A
Ar II	448,18	27,3	18,73	21,49	B
Ar II	454,50	18,8	17,14	19,86	B
Ar II	457,93	16,0	17,26	19,97	B
Ar II	458,98	39,8	18,42	21,12	A
Ar II	460,95	63,1	18,45	21,14	A
Ar II	465,79	17,8	17,14	19,80	B
Ar II	472,68	23,5	17,14	19,76	A
Ar II	473,59	23,2	16,64	19,26	A
Ar II	476,48	26	17,26	19,86	B
Ar II	480,60	46,8	16,64	19,22	A
Ar II	484,78	17,0	16,74	19,30	B
Ar II	487,98	49,4	17,14	19,68	A

Tableau 10 : Données spectroscopiques des raies d'Ar II utilisées ; Erreur sur  $A_{ul} \leq 5\%$  (A) ; Erreur sur  $A_{ul} \leq 10\%$  (B) ; Erreur sur  $A_{ul} \leq 25\%$  (C).

## Partie 4 : Étude des Plasmas Induits par Laser (PILs) par SOE et DT

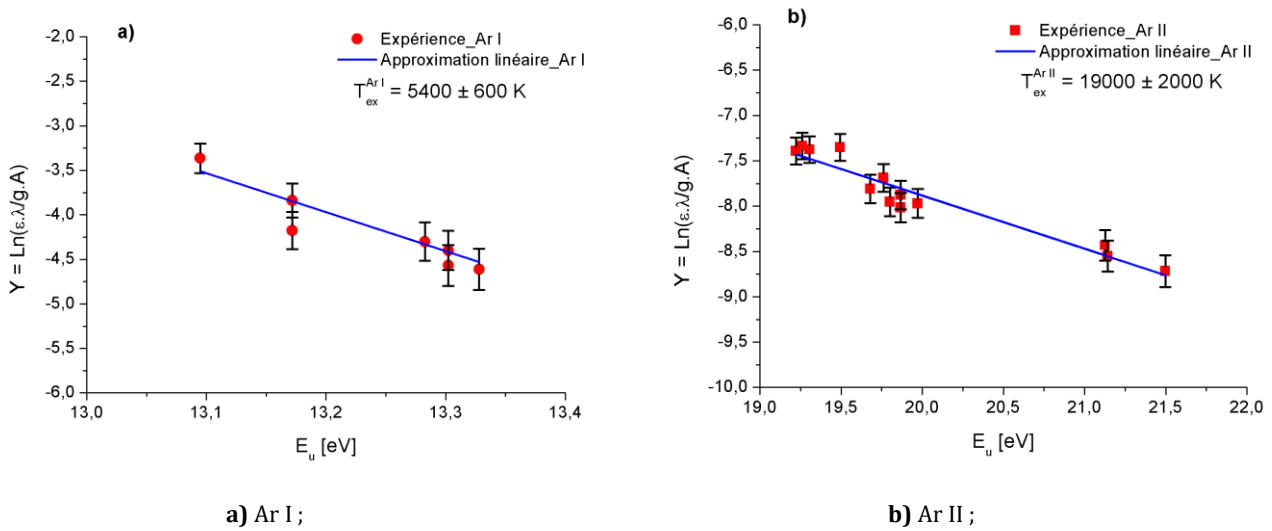


Figure 4-23 : Graphes de Boltzmann ;  $t_{gd} = 550$  ns ;  $X = 0$  mm ;  $r = 0$  mm ;  $F_G = 44,9$  kJ.cm<sup>-2</sup>.

Les répartitions spatio-temporelles des températures d'excitations des espèces Ar I et Ar II sont respectivement représentées sur la *Figure 4-24* et la *Figure 4-25*. Les valeurs maximales de la température d'excitation d'Ar I ( $T_{ex}^{Ar I}$ ) sont obtenues quelques nanosecondes après la formation du plasma. Il existe une forte fluctuation de  $T_{ex}^{Ar I}$  autour de 12000 K à 190 ns, ce qui est probablement dû à la forte ionisation de l'argon et à la difficulté d'extraire la raie d'Ar I du fond adjacent. Après cette période, les valeurs de  $T_{ex}^{Ar I}$  se stabilisent autour de 4000 K avec une variation spatio-temporelle faible.

Les valeurs de la température d'excitation d'Ar II ( $T_{ex}^{Ar II}$ ) évoluent entre 30000 K et 15000 K avec des valeurs maximales atteintes au début du claquage, ce qui montre un refroidissement global du plasma en fonction du temps. Les gradients spatio-temporels de  $T_{ex}^{Ar II}$  sont également faibles entre 190 ns et 550 ns.

Quant à l'écart obtenu entre les températures d'excitation d'Ar I et Ar II en un même point du plasma, il traduit clairement l'absence d'ETL, au moins dans les premiers instants du plasma.

## Partie 4 : Étude des Plasmas Induits par Laser (PILs) par SOE et DT

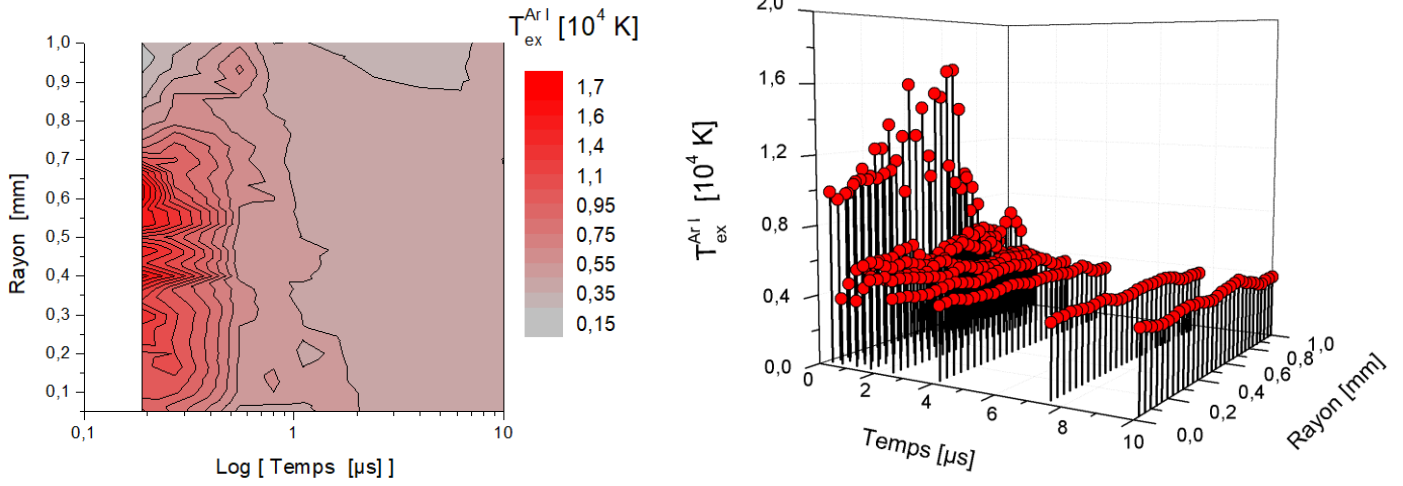


Figure 4-24 : Variations spatio-temporelles de la température d'excitation  $T_{ex}^{Ar I}$  d'Ar I ;  $X = 0$  mm ;  $Z = 0$  mm ;  $F_G = 44,9$  kJ.cm<sup>-2</sup>.

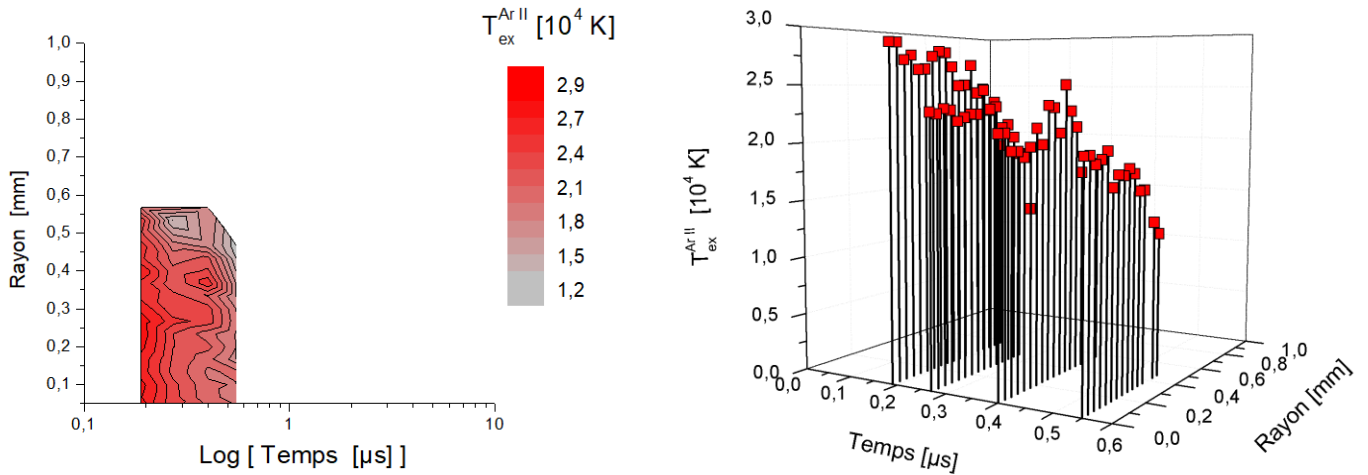


Figure 4-25 : Variations spatio-temporelles de la température d'excitation  $T_{ex}^{Ar II}$  d'Ar II ;  $X = 0$  mm ;  $Z = 0$  mm ;  $F_G = 44,9$  kJ.cm<sup>-2</sup>.

## 4.8.3.3 Mesure de densité électronique par élargissement Stark

La densité électronique est déterminée en utilisant les raies 696,5 nm d'Ar I et 480,6 nm d'Ar II, spectralement isolées et non auto-absorbées (cf. paragraphe 4.8.7.5, page 147), et dont les élargissements Stark sont connus :

$$\Delta\lambda_S(696,5 \text{ nm d'Ar I}) = (40 \pm 12) \times 10^{-3} \text{ nm}$$

pour  $N_e = 0,6 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  et  $T_e = 11900 \text{ K}$  [167]

$$\Delta\lambda_S(480,6 \text{ nm d'Ar II}) = (44 \pm 11) \times 10^{-3} \text{ nm}$$

pour  $N_e = 1,79 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  et  $T_e = 11520 \text{ K}$  [168]

sont sensibles à la variation de la densité électronique et peu dépendant de la température. Les valeurs des élargissements Stark en fonction de la densité électronique et de la température électronique sont fournies par les tables [22], [35], pour différentes espèces. La relation de Griem (cf. *équation 2.15*) permet donc de déterminer la densité électronique en connaissant les élargissements Stark expérimentaux, sans hypothèse d'équilibre thermodynamique.

La *Figure 4-26* et la *Figure 4-27* représentent les variations spatio-temporelles de la densité électronique issue de la raie 696,5 nm d'Ar I ( $N_e^{Ar I}$ ) et de la raie 480,6 nm d'Ar II ( $N_e^{Ar II}$ ), respectivement. Ainsi,  $N_e^{Ar I}$  présente une large plage de variations spatio-temporelles avec une valeur maximale de  $3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  obtenue au centre du plasma et juste après le claquage. Les variations temporelles de  $N_e^{Ar I}$  sont quasi-exponentielles entre 190 ns et 10  $\mu\text{s}$ . Cependant, les gradients spatiaux de  $N_e^{Ar I}$  sont relativement faibles, surtout au-delà de 2  $\mu\text{s}$  après le claquage.

Contrairement à la raie 696,5 nm d'Ar I, les données issues de la raie 480,6 nm d'Ar II ne couvrent pas une large gamme spatio-temporelle à cause de la forte diminution de la densité de l'argon ionique avec le refroidissement du plasma. Les valeurs de  $N_e^{Ar II}$  sont comprises entre  $4,7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  et  $3,2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  entre 190 ns et 550 ns, respectivement. Le gradient temporel de  $N_e^{Ar II}$  est plus important que son gradient spatial.

Nous remarquons donc que  $N_e^{Ar II}$  est environ 30 % supérieure à  $N_e^{Ar I}$ . Même si les conditions d'ETL ne semblent pas réunis pour le plasma d'argon, les valeurs de densités électroniques ne devraient pas être très différentes en fonction de la raie utilisée car l'élargissement Stark est indépendant de l'ETL. Nous apportons donc une discussion sur les écarts de densités électroniques constatés à la sous-section 4.8.6, page 141.

## Partie 4 : Étude des Plasmas Induits par Laser (PILs) par SOE et DT

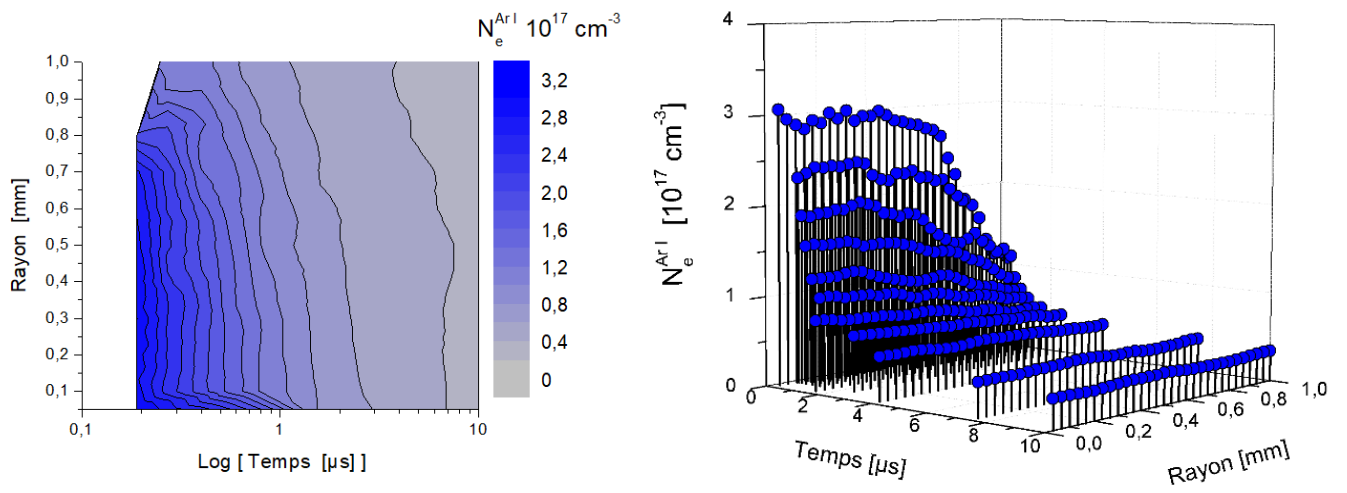


Figure 4-26 : Variations spatio-temporelles de la densité électronique  $N_e^{Ar I}$  issue de la raie 696,5 nm d'Ar I ;  
 $X = 0 \text{ mm}$  ;  $Z = 0 \text{ mm}$  ;  $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .

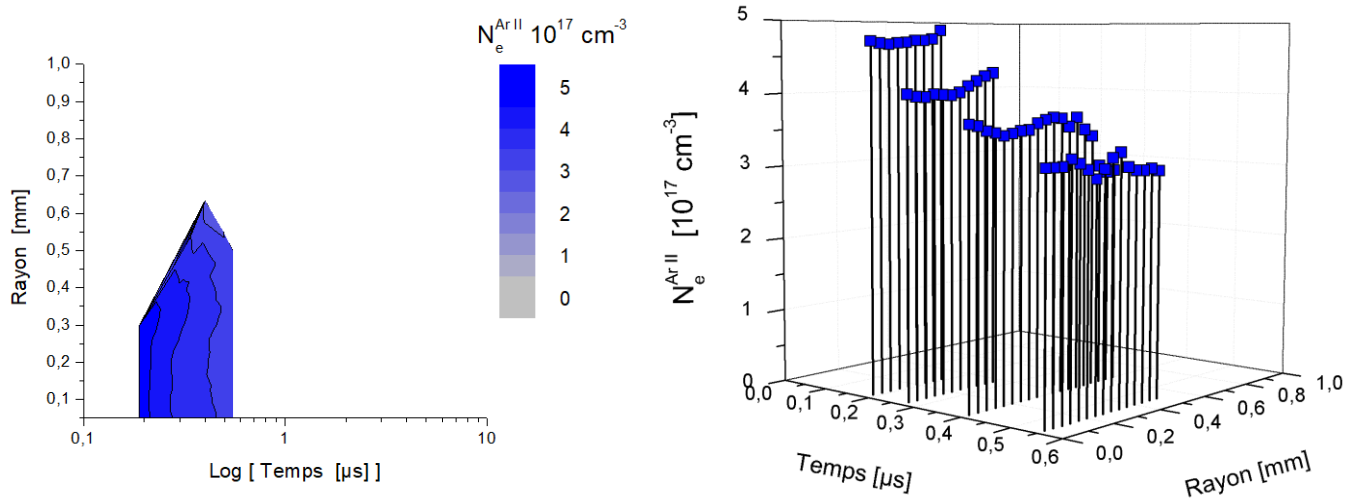


Figure 4-27 : Variations spatio-temporelles de la densité électronique  $N_e^{Ar II}$  issue de la raie 480,6 nm d'Ar II ;  
 $X = 0 \text{ mm}$  ;  $Z = 0 \text{ mm}$  ;  $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .



#### 4.8.4 Mesure des paramètres du plasma d'argon par DT

Dans cette partie, nous allons caractériser le plasma d'argon en utilisant la technique de diffusion laser Thomson. Une fois que le plasma est généré par le premier Nd : YAG à 532 nm, une deuxième impulsion laser issue du second Nd : YAG à 532 nm traverse le plasma selon son axe central ( $X = 0$  mm ;  $Z = 0$  mm) dans la direction  $Y$  (cf. *Figure 4-15*). La région sondée s'étend donc sur toute la zone d'interaction plasma/laser sonde, dont l'image est faite sur la fente d'entrée du spectromètre. La faible durée de l'impulsion du laser sonde (5 ns) devant la durée de vie du plasma permet de sonder ce dernier de façon temporelle. Les paramètres du plasma sont déterminés en ajustant les spectres de diffusion obtenus sur chaque ligne de la matrice ICCD, avec des spectres simulés reposant sur la théorie de la diffusion Thomson décrite dans la section 2.2.

##### 4.8.4.1 Spectres de diffusion Thomson du plasma d'argon

Les spectres de diffusion Thomson sont représentés sur la *Figure 4-28* entre 400 ns et 10  $\mu$ s. Les satellites électroniques représentant la diffusion électronique sont répartis de part et d'autre de la longueur d'onde du laser sonde (532 nm). La contribution ionique de la diffusion Thomson et la diffusion Rayleigh sont superposées dans la partie centrale dont l'intensité a été ici exagérée pour mettre en évidence la diffusion électronique, plus faible en intensité. La position spectrale et la forme des satellites électroniques sont liées aux paramètres électroniques qui sont ici la température électronique  $T_e$  et la densité électronique  $N_e$ . Par conséquent, plus on s'éloigne du centre du plasma (dans la direction  $Y$ ) ou plus le plasma vieillit, plus  $T_e$  et  $N_e$  diminuent, d'où le rapprochement du signal de diffusion vers la longueur d'onde centrale (532 nm) dans l'espace et dans le temps. Les répartitions spatio-temporelles des paramètres électroniques sont déterminées en  $X = 0$  mm et  $Z = 0$  mm, pour chaque position  $Y$  depuis le centre du plasma ( $Y = 0$  mm) vers l'extérieur.

La *Figure 4-29* montre des spectres de diffusion Thomson au centre du plasma d'argon ( $X = 0$  mm ;  $Y = Z = 0$  mm, soit  $r = 0$  mm) à pression atmosphérique, pour les différents délais entre 400 ns et 10  $\mu$ s. La calibration en énergie et la soustraction du bruit de fond permettent d'avoir des satellites électroniques symétriques par rapport à la longueur d'onde centrale. L'ajustement de chaque spectre avec un spectre simulé permet de déterminer  $T_e$  et  $N_e$  dont les valeurs diminuent ici en fonction du temps. Par conséquent, l'intensité du signal de diffusion décroît dans le temps et le sondage du plasma par DT devient difficile au-delà de 10  $\mu$ s. L'ajustement des spectres reste difficile aussi dans les premiers instants (par exemple à un délai de 400 ns sur la *Figure 4-29*) où le plasma évolue très vite pendant le sondage par DT et la distribution maxwellienne des vitesses des électrons n'est pas garantie, par conséquent, les températures électroniques mesurées dans les premiers instants (< 400 ns) sont à prendre avec précaution.

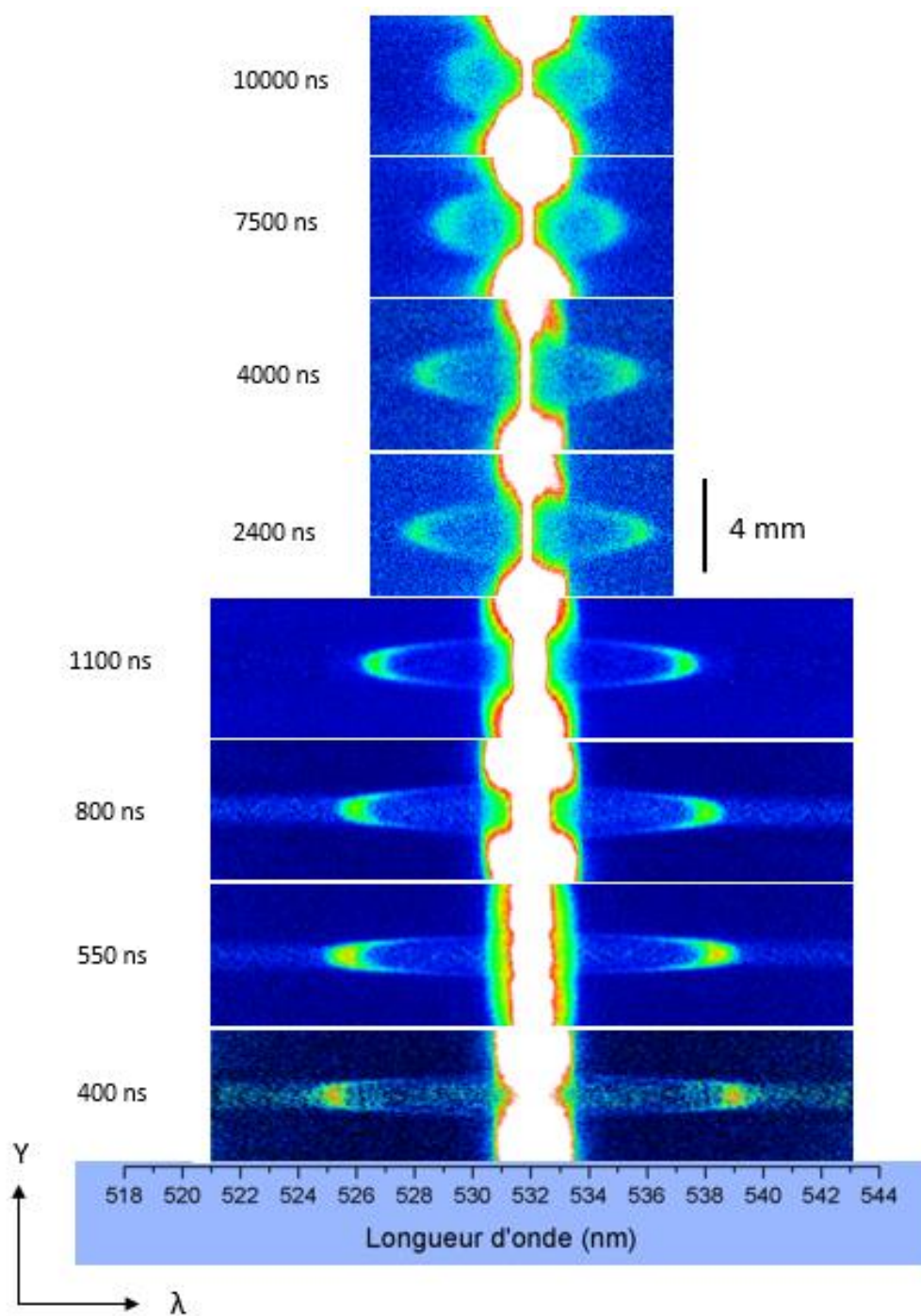


Figure 4-28 : Variations temporelles des spectres de diffusion Thomson ;  
 $X = 0 \text{ mm}$  ;  $Z = 0 \text{ mm}$  ;  $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ;  $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ; Réseau de 1200 traits.mm<sup>-1</sup>.

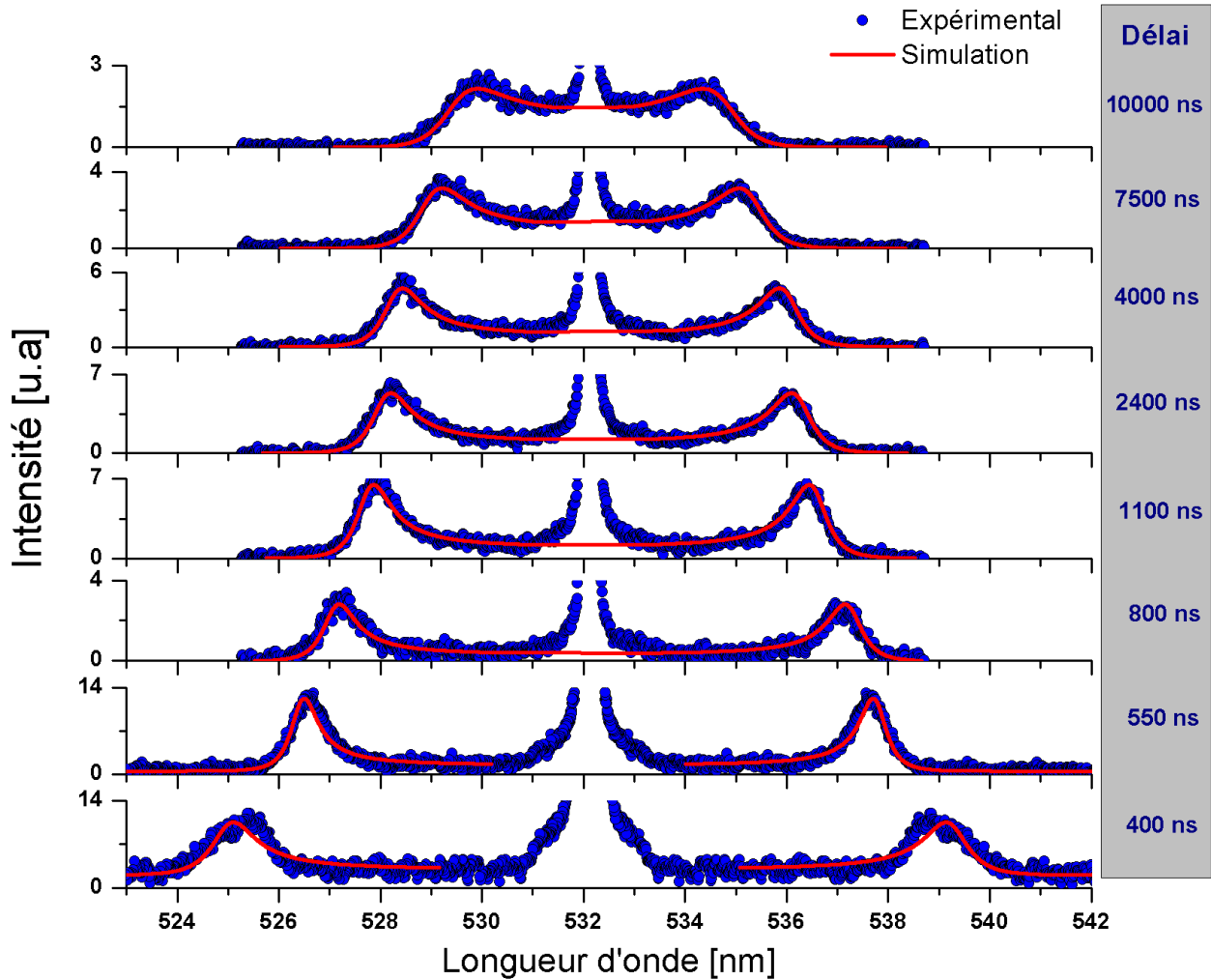


Figure 4-29 : Variations temporelles des spectres de diffusion Thomson ;  
 $X = 0 \text{ mm}$  ;  $r = 0 \text{ mm}$  ;  $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ;  $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ; Réseau de  $1200 \text{ traits.mm}^{-1}$ .

#### 4.8.4.2 Mesure des paramètres électroniques par diffusion Thomson

Nous avons représenté les variations spatio-temporelles de la température électronique  $T_e^{DT}$  et de la densité électronique  $N_e^{DT}$ , mesurées par diffusion Thomson (DT) sur la *Figure 4-30* et la *Figure 4-31*, respectivement. La température électronique décroît quasi-exponentiellement dans le temps avec un faible gradient spatial. Après 400 ns,  $T_e^{DT}$  varie entre 45000 K et 55000 K avec une augmentation vers l'extérieur du plasma. Cet effet provient probablement des erreurs de mesures issues de la faible section d'interaction plasma/laser sonde rendant le sondage moins précis dans les premiers instants après le claquage. Par ailleurs, la densité électronique décroît aussi de façon spatio-temporelle. Les valeurs de  $N_e^{DT}$  les plus élevées, autour de  $4,5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ , sont obtenues au centre du plasma et dans les

premiers instants après le claquage. La variation spatiale de  $N_e^{DT}$  est assez nette jusque vers 400 ns mais devient faible au cours du temps.

Une représentation de la variation temporelle des paramètres électroniques est donnée sur la *Figure 4-32* au centre du plasma ( $X = Y = Z = 0$  mm). Nous remarquons que la température électronique suit deux lois de décroissance temporelles contrairement à la densité électronique qui n'en suit qu'une seule. En effet, la température électronique change de mode de décroissance au bout de  $1,6 \mu\text{s}$  après le claquage et connaît même une légère augmentation vers  $10 \mu\text{s}$ . Cet effet a déjà été observé par [17], [46], [169] sur un plasma d'argon sondé par diffusion Thomson. L'explication de cet effet repose sur le phénomène de chauffage du plasma induit par le laser sonde. Pour mettre en évidence expérimentalement ce phénomène de chauffage, nous avons donc fait varier l'énergie du laser sonde pour mesurer les paramètres électroniques au centre du plasma d'argon à un délai fixe de  $10 \mu\text{s}$  (cf. sous-section suivante).

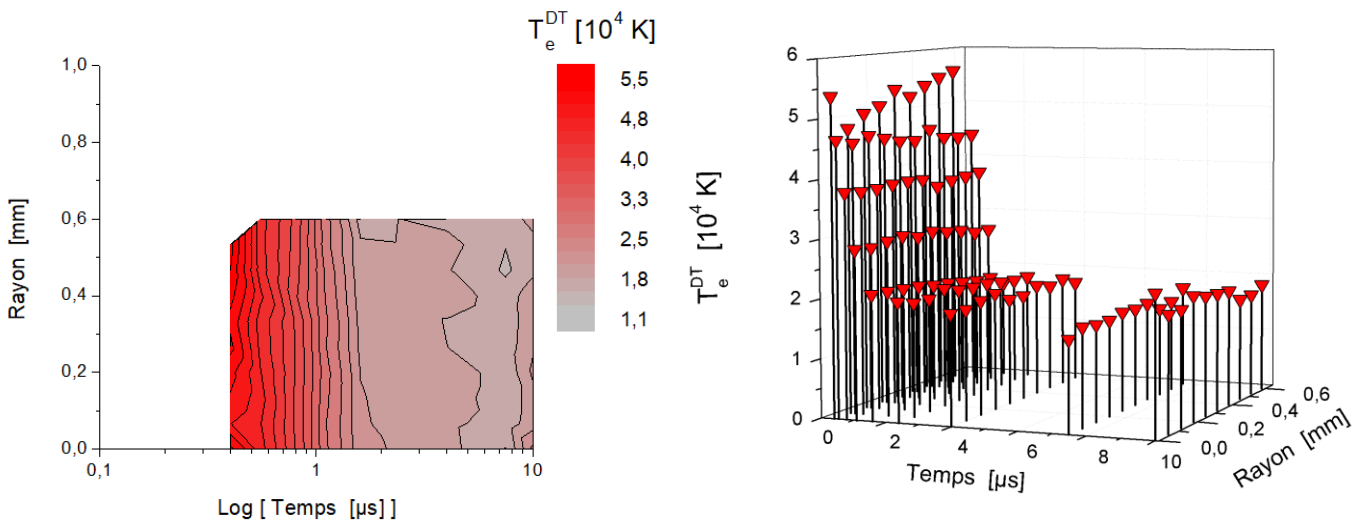


Figure 4-30 : Variations spatio-temporelles de la température électronique  $T_e^{DT}$  par diffusion Thomson ;  
 $X = 0$  mm ;  $Z = 0$  mm ;  $F_G = 44,9$  kJ.cm<sup>-2</sup> ;  $F_S = 0,28$  kJ.cm<sup>-2</sup>.

## Partie 4 : Étude des Plasmas Induits par Laser (PILs) par SOE et DT

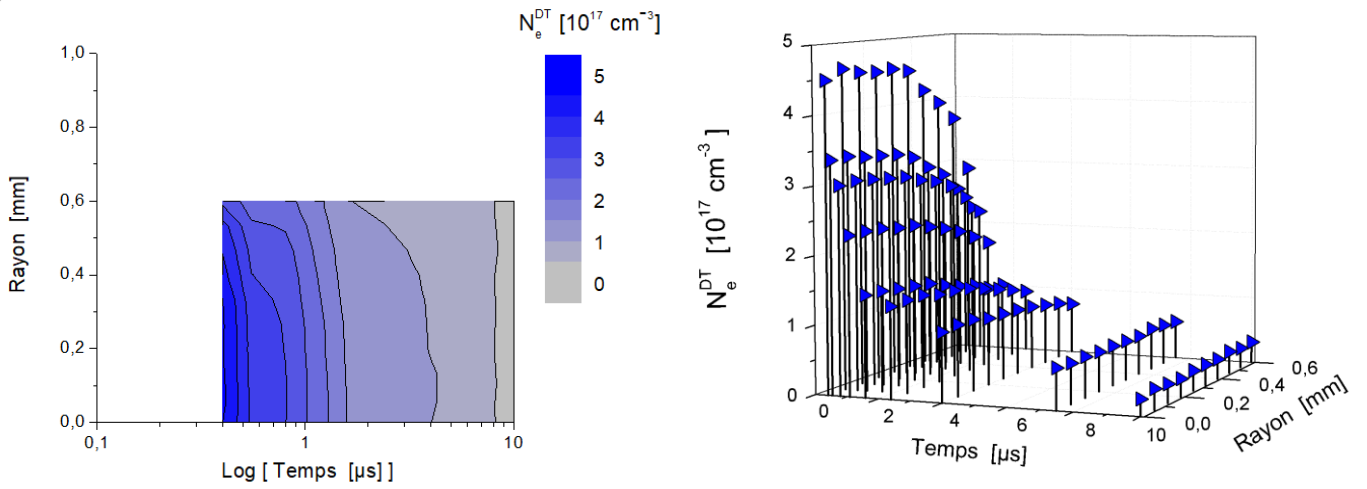


Figure 4-31 : Variations spatio-temporelles de la densité électronique  $N_e^{DT}$  par diffusion Thomson ;  
 $X = 0 \text{ mm}$  ;  $Z = 0 \text{ mm}$  ;  $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ;  $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .

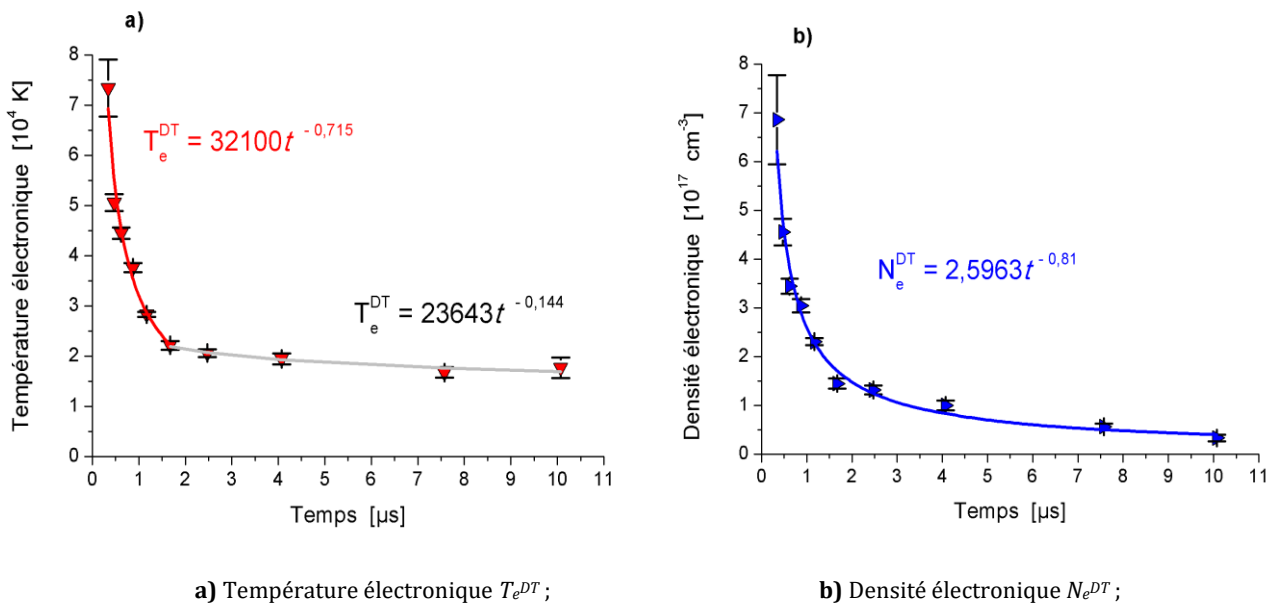


Figure 4-32 : Variations temporelles des paramètres du plasma mesurés par DT ;  
 $X = 0 \text{ mm}$  ;  $r = 0 \text{ mm}$  ;  $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ;  $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ; Dans les formules :  $T_e^{DT}$  en [K],  $N_e^{DT}$  en [ $10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ] et  $t$  en [ $\mu\text{s}$ ].

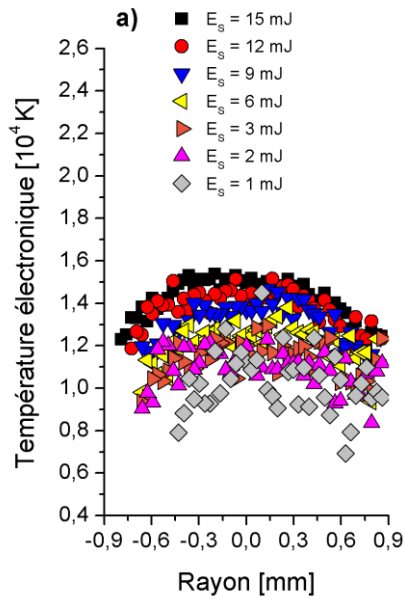
#### 4.8.5 Effets du laser sonde sur le plasma d'argon

Dans le but de mettre en évidence les effets du laser sonde sur le plasma, nous avons fait varier l'énergie du laser sonde  $E_s$  en fixant celle du laser générateur  $E_G = 10$  mJ. Le laser sonde (à 532 nm) est focalisé sans expandeur de faisceau (cf. section 4.7, page 121) avec un diamètre  $D = 0,6$  cm, une lentille de focale  $f = 50$  cm et donc de section environ  $6,2 \times 10^{-5}$  cm<sup>2</sup> au point de focalisation :  $F_s [\text{m} \cdot \text{cm}^{-2}] = E_s [\text{mJ}] / 6,2 \times 10^{-5}$ .

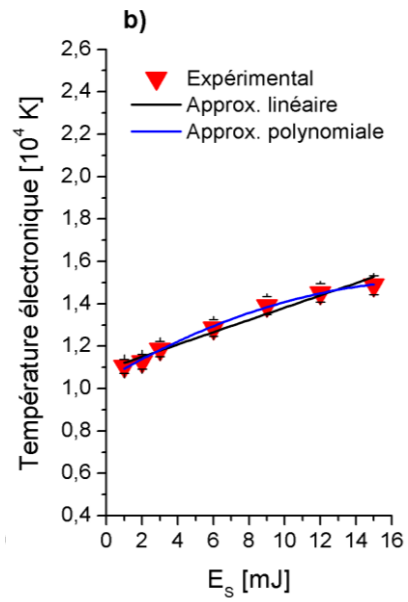
Puis, nous avons mesuré les paramètres électroniques du plasma d'argon à pression atmosphérique par diffusion Thomson. Le délai de sondage est choisi à  $t_{gd} = 10$  μs, alors que le plasma s'est suffisamment refroidi afin de mieux déceler un effet de chauffage par le laser sonde, tout en conservant un signal de DT relativement intense. Considérant que le plasma est bien reproductible, les valeurs de  $T_e$  et  $N_e$  mesurées doivent alors rester constantes. En effet, la puissance du laser sonde  $P_L$  (cf. équation 2.52) ne doit influencer que l'intensité du signal de diffusion, et pas sa forme ou sa position. C'est d'ailleurs une des raisons pour laquelle des lasers de puissances sont utilisés pour améliorer l'intensité des signaux de diffusion Thomson.

Les résultats de cette expérience sont reportés sur la *Figure 4-33* et la *Figure 4-34*, respectivement pour la température électronique et la densité électronique. La température électronique mesurée varie considérablement, à une position donnée, avec une amplitude d'environ 40 % lorsque l'énergie du laser sonde  $E_s$  passe de 1 à 15 mJ. Contrairement à la température électronique, la densité électronique ne varie que très peu avec la modification l'énergie du laser sonde, avec une valeur moyenne de  $0,34 \times 10^{17}$  cm<sup>-3</sup> au centre du plasma.

La température électronique mesurée par diffusion Thomson est donc plus sensible à l'énergie du laser sonde que la densité électronique mesurée avec la même méthode : le laser sonde « chauffe » les électrons libres du plasma par Bremsstrahlung inverse. Ce chauffage du plasma a déjà été observé par Murphy [170] et Dzierżęga et al. [171] lors d'expériences similaires à la nôtre. Nous pouvons aussi évoquer des mesures faites par Pieta [219] qui a enregistré des raies d'Ar III en présence du laser sonde Thomson alors que ces dernières ne sont pas présentes sur le spectre d'émission uniquement obtenu par SOE. La formation d'Ar III montre aussi un effet de chauffage induit par le laser sonde Thomson. La détermination de la température électronique du plasma non perturbé peut théoriquement se faire en déterminant l'ordonnée à l'origine d'une fonction approximant l'évolution de  $T_e$  en fonction de  $E_s$  (cf. *Figure 4-33 b*). Cependant, il n'existe pas encore de consensus sur le choix de la fonction à utiliser : une approximation linéaire semble donner une température électronique plus élevée que celle du plasma non perturbée [171], alors qu'une approximation polynomiale semble physiquement plus réaliste car l'effet de perturbation sur la température électronique est non linéaire [170]. Les travaux de Dzierżęga et al. [171], dans lesquels sont mesurées  $T_e$  et  $N_e$  durant le passage de l'impulsion sonde, semblent valider cette dernière hypothèse. Dans tous les cas, le chauffage du plasma par le laser sonde est bien réel, sauf à choisir des énergies du laser sonde suffisamment faibles, il est donc important de quantifier la variation de température électronique induite par l'apport d'énergie du laser sonde de façon à corriger la mesure.

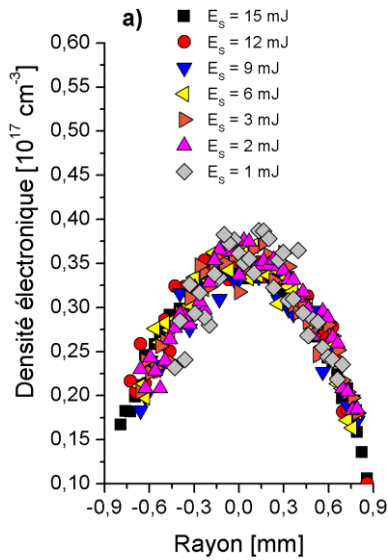


a) Variations spatiales le long de Y ;

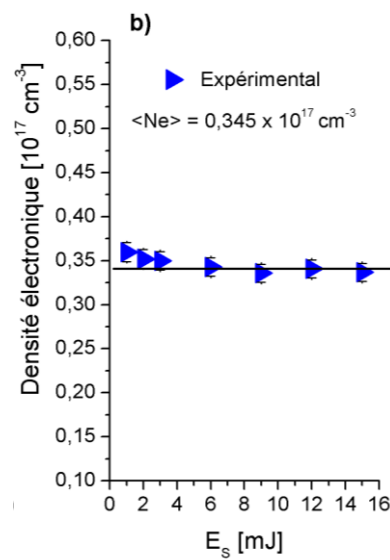


b) Variations au centre du plasma, en  $r = 0$  mm ;

Figure 4-33 : Variations spatiales de  $T_e^{DT}$  en fonction de  $E_S$ ;  $X = 0$  mm ;  $t_{gd} = 10 \mu s$  ;  $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .



a) Variations spatiales le long de Y ;



b) Variations au centre du plasma, en  $r = 0$  mm ;

Figure 4-34 : Variations spatiales de  $N_e^{DT}$  en fonction de  $E_S$ ;  $X = 0$  mm ;  $t_{gd} = 10 \mu s$  ;  $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .

## 4.8.6 Disparités entre les mesures par SOE et par DT

Afin de comparer les résultats issus des deux techniques spectroscopiques de SOE et de DT, nous avons représenté sur la *Figure 4-35* les variations spatio-temporelles des différentes températures à savoir la température d'excitation  $T_{ex}^{Ar I}$  des Ar I déterminée par SOE, la température d'excitation  $T_{ex}^{Ar II}$  des Ar II déterminée par SOE, et la température électronique  $T_e^{DT}$  déterminée par DT.

Nous pouvons remarquer que  $T_{ex}^{Ar I}$  est inférieure à  $T_{ex}^{Ar II}$  qui est elle-même inférieure à  $T_e^{DT}$ . Il existe un écart moyen de 13000 K entre  $T_{ex}^{Ar I}$  et  $T_{ex}^{Ar II}$  et un écart moyen de 30000 K entre  $T_{ex}^{Ar II}$  et  $T_e^{DT}$  pour un délai de 500 ns. Les écarts de température ont tendance à diminuer au cours du temps même si  $T_e^{DT}$  ré-augmente probablement par l'effet de chauffage induit par le laser sonde. Par ailleurs, la disparition des Ar II par recombinaison à trois corps au bout de quelques centaines de nanosecondes ne permet pas une comparaison des températures sur une large période. Dans tous les cas, le plasma est hors d'équilibre thermique, et ce déséquilibre thermique est plus important au début de la formation du plasma.

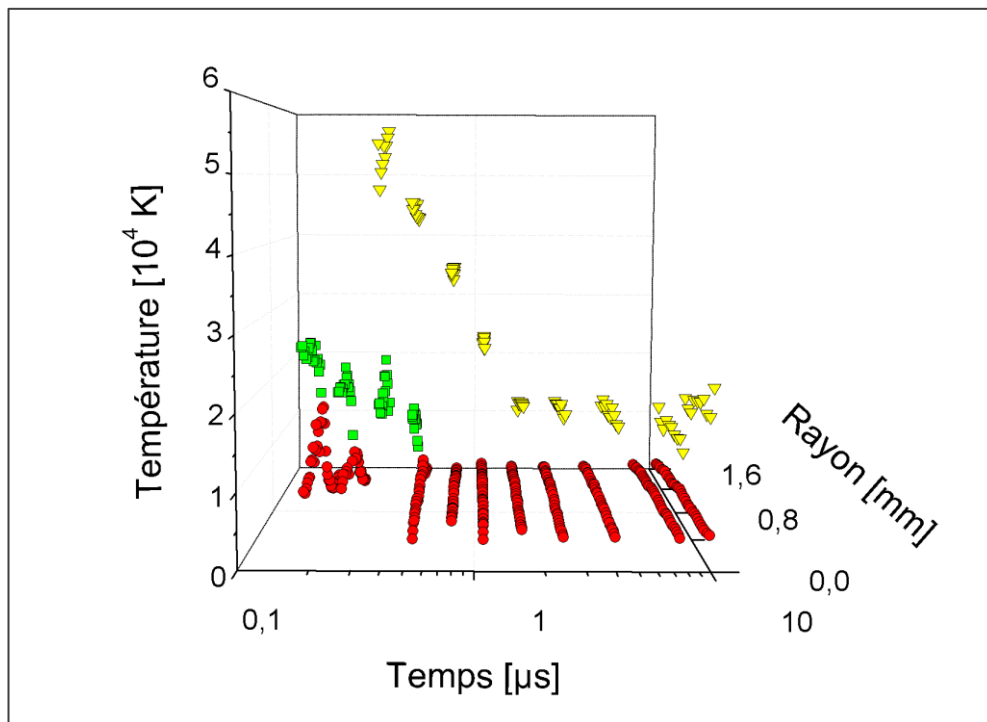


Figure 4-35 : Variations spatio-temporelles des températures du plasma d'argon déterminées par SOE et par DT ;  
 (●)  $T_{ex}^{Ar I}$ ; (■)  $T_{ex}^{Ar II}$ ; (▼)  $T_e^{DT}$ ;  $X = 0$  mm ;  $Z = 0$  mm ;  $F_G = 44,9$  kJ.cm<sup>-2</sup> ;  $F_S = 0,28$  kJ.cm<sup>-2</sup>.



Nous avons aussi représenté sur la *Figure 4-36* les variations spatio-temporelles des différentes densités électroniques déterminées par l'élargissement Stark de la raie 696,5 nm d'Ar I ( $N_e^{Ar I}$ ), par l'élargissement Stark de la raie 480,6 nm d'Ar II ( $N_e^{Ar II}$ ) et par DT ( $N_e^{DT}$ ). Il existe également des écarts de valeurs surtout dans les premiers instants du plasma : pour des délais inférieurs à 1  $\mu$ s,  $N_e^{Ar I}$  est environ deux fois plus faible que  $N_e^{Ar II}$  alors que  $N_e^{DT}$  est assez proche de  $N_e^{Ar II}$ . Cependant, les densités électroniques semblent converger vers les mêmes valeurs après un délai de 1  $\mu$ s même si les Ar II disparaissent après ce délai, ce qui induit une perte d'information sur  $N_e^{Ar II}$ .

Les déterminations des densités électroniques par l'élargissement Stark des raies spectrales ou par la diffusion Thomson, sont indépendantes de l'état d'équilibre du plasma, et devraient donc donner des valeurs similaires. Nous supposons donc une sous-évaluation de  $N_e^{Ar I}$  qui pourrait être expliquée par les causes suivantes :

- La faible densité des Ar I (au profit d'Ar II) dans les premiers instants de vie du plasma, se manifestant par des raies spectrales peu intenses, difficiles à extraire du fond continu adjacent. Ceci, cumulé avec la propagation d'erreurs lors du traitement des données (notamment lors du lissage du profil ou de l'inversion d'Abel, puis avec l'extraction de la contribution lorentzienne au profil), se traduit par un faible rapport signal/bruit de l'intensité des raies d'Ar I (cf. *Figure 4-21*) et une augmentation substantielle de l'incertitude de la mesure.
- L'élargissement Stark normalisé de la raie 696,5 nm d'Ar I dépend de la température, au moins dans une certaine gamme.
- L'hypothèse de linéarité de l'élargissement Stark en fonction de  $N_e$ , n'est plus valide au-delà d'une certaine limite.

Une étude plus approfondie de cette dernière hypothèse a été faite dans la sous-section suivante.

Néanmoins, il semble clair que, si la détermination de la température du milieu par SOE pose question, il est possible d'obtenir une bonne évaluation de la densité électronique dans le plasma, sous réserve de bien choisir les raies à utiliser : un état d'ionisation supérieur dans les premiers instants, puis une raie atomique au-delà de environ 1  $\mu$ s, avec dans les deux cas, une bonne connaissance de l'élargissement normalisé de la raie et de sa variation en fonction de la température.

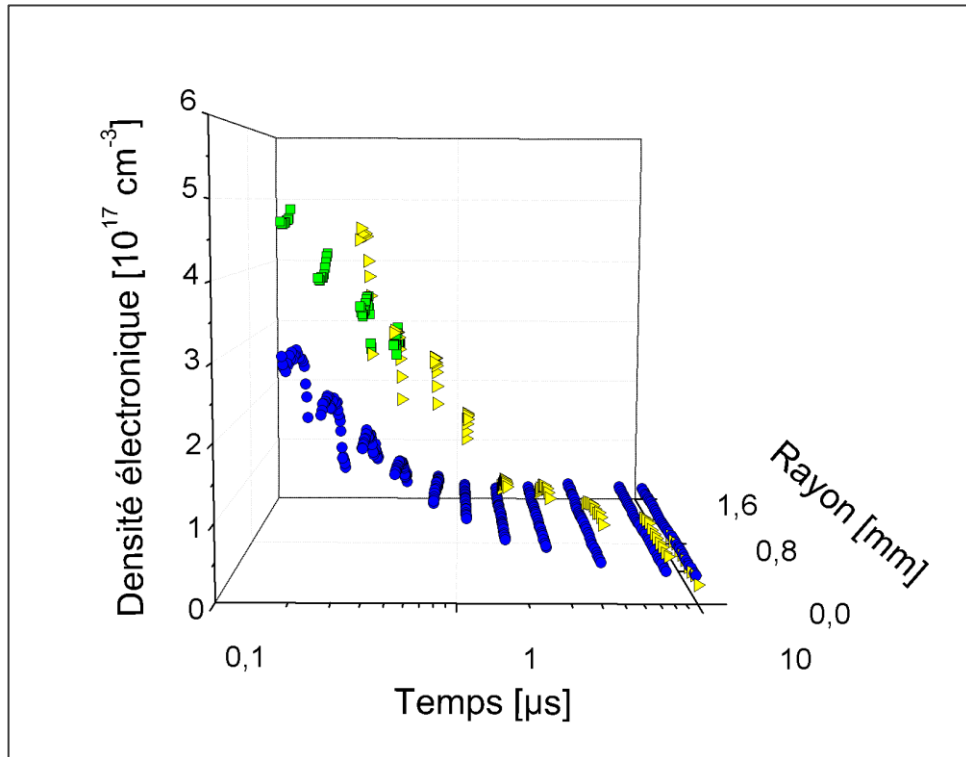


Figure 4-36 : Variations spatio-temporelles des densités électroniques du plasma d'argon déterminées par SOE et par DT ;  
 (●)  $N_{eArI}$ ; (■)  $N_{eArII}$ ; (▲)  $N_{eDT}$ ;  $X = 0$  mm ;  $Z = 0$  mm ;  $F_G = 44,9$  kJ.cm<sup>-2</sup> ;  $F_S = 0,28$  kJ.cm<sup>-2</sup>.

#### 4.8.7 Vérification de la linéarité des paramètres Stark en fonction de $N_e$

##### 4.8.7.1 Introduction

Nous savons que l'utilisation de l'effet Stark est un moyen efficace pour déterminer la densité électronique d'un plasma grâce aux paramètres Stark (élargissement Stark  $\Delta\lambda_s$  et déplacement Stark  $\Delta ds$ ) d'une raie donnée induits par les électrons libres. La théorie de Griem [21] basée sur l'approximation d'impact prévoit une dépendance quasi-linéaire des paramètres Stark en fonction de la densité électronique (cf. paragraphe 2.1.4.3), ce qui semble confirmé par de nombreux travaux expérimentaux au moins dans une gamme donnée de  $N_e$  et  $T_e$  [22]. Cependant, Vitel et Skowronek [172] ont remis en question cette quasi-linéarité au-delà d'une certaine densité électronique, notamment pour les raies d'argon atomique à 696,5 nm et ionisé à 480,6 nm. En mesurant les paramètres Stark de ces deux raies d'argon émises par une lampe à tube flash, ils auraient ainsi décelé une variation non-linéaire de ces paramètres Stark en fonction de la densité électronique entre  $2 \times 10^{17}$  cm<sup>-3</sup> et  $10 \times 10^{17}$  cm<sup>-3</sup>.

Afin de vérifier ce phénomène, nous avons profité de notre dispositif expérimental, pour tenter d'évaluer l'évolution des paramètres Stark des deux raies d'Ar I et d'Ar II dans une gamme étendue de densités électroniques et de températures, en nous rapprochant au mieux des critères de classification et de la procédure préconisés par les auteurs des compilations du NIST [173]. En l'occurrence :

- Le plasma semble relativement homogène au moins en densités électroniques, ce qui permettra de limiter les problèmes liés au traitement des données (inversion d'Abel) ;
- Les méthodes de diagnostic (DT) et de détermination des paramètres Stark (SOE) sont indépendantes ;
- La méthode de diagnostic n'est pas dépendante de l'état d'équilibre du plasma, et n'est pas intrusive (au moins pour la détermination de la densité électronique (cf. sous-section 4.8.5)).

### 4.8.7.2 Les différentes sources d'élargissement

Les différentes sources d'élargissement d'une raie d'émission sont décrites dans la sous-section 2.1.4. Dans nos conditions expérimentales, les sources d'élargissement les plus importantes sont l'effet Stark, l'effet Doppler et l'élargissement de la fonction d'appareil [174], et le profil d'une raie d'émission suit un profil de Voigt, c'est-à-dire la convolution d'un profil lorentzien avec un profil gaussien (cf. paragraphe 2.1.4.5).

Le logiciel de traitement des données utilisé, réalise une déconvolution de ce profil de Voigt afin d'en extraire la contribution lorentzienne (l'élargissement Stark caractérisé par la largeur à mi-hauteur (FWHM)  $\Delta\lambda_s$  et le déplacement Stark  $\Delta d_s$ ), en évaluant au préalable la contribution gaussienne (élargissements par la fonction d'appareil et par effet Doppler). À noter que pour une valeur de température cinétique des atomes d'argon de  $10^5$  K, maximale pour nos conditions expérimentales, les élargissements Doppler des raies 696,5 nm d'Ar I et 480,6 nm d'Ar II sont respectivement égaux à 0,25 Å et 0,17 Å, alors que les élargissements par la fonction d'appareil sont de l'ordre de 0,5 Å et 0,2 Å aux longueurs d'ondes respectives.

Par ailleurs, le déplacement Stark  $\Delta d_s$  sera évalué comme l'écart entre la longueur d'onde correspondant au maximum de chaque raie d'émission au point de mesure et sa longueur d'onde « théorique » estimée expérimentalement comme la longueur d'onde de la raie émise en périphérie du plasma, où la raie n'est pas déplacée en raison des faibles densités électroniques.

### 4.8.7.3 Procédure expérimentale

Nous avons caractérisé simultanément par SOE et par DT le centre d'un plasma d'argon induit par laser (cf. section 4.6) : la SOE nous permet d'une part de déterminer les paramètres Stark des raies 696,5 nm d'Ar I et 480,6 nm d'Ar II à différents délais, au centre du plasma ; la DT nous permet quant à elle de déterminer les densités électroniques correspondantes à ces

différents délais. L'objectif principal est de vérifier l'existence de cette non-linéarité trouvée par Vitel et Skowronek [172] en corrélant les paramètres Stark avec les densités électroniques.

La focalisation du laser générateur se fait avec le dispositif à extenseur de faisceau, avec un diamètre  $D = 2$  cm et une lentille de 10 cm de focale. Dans ces conditions, le *waist* au point de focalisation est de  $2,7 \mu\text{m}$ , et la section est d'environ  $2,2 \times 10^{-7} \text{ cm}^2$ .

Pour déterminer les paramètres de claquage laser et d'observation les plus adaptés à la fois pour couvrir une gamme suffisante de densités électroniques, tout en conservant un plasma relativement stable, nous avons fait varier la pression dans la chambre d'analyse (le « réacteur ») de 0,1 bar jusqu'à la pression atmosphérique. Il faut noter que l'énergie  $E_G$  du laser générateur de plasma, choisie entre 5 et 7 mJ pour cette étude, est adaptée pour chaque mesure afin d'assurer une plus grande stabilité spatiale du plasma. Nous avons alors analysé à différents instants de l'étincelle, l'élargissement de la raie d'Ar I en fonction de la pression (cf. Figure 4-37). Celui-ci augmente clairement avec la pression d'argon, et c'est donc aussi le cas pour la densité électronique dans le plasma. Néanmoins, il apparaît que l'étincelle est spatialement plus stable à des pressions d'argon inférieures à la pression atmosphérique. Afin d'avoir un bon compromis entre l'obtention d'une large gamme de variation de la densité électronique et des mesures reproductibles, nous avons décidé de réaliser nos expériences à une pression d'argon de 0,4 bar. Nous avons choisi également de travailler avec une énergie du laser générateur un peu plus élevée, autour de 15 mJ.

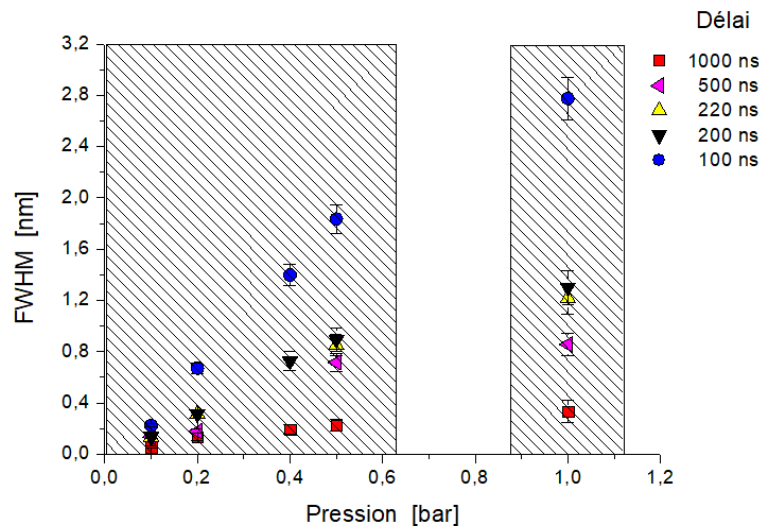


Figure 4-37 : Raie 696,5 nm d'Ar I : Évolution du FWHM du profil de Voigt de la raie en fonction de la pression d'argon pour différents délais  $t_{gd}$  après l'allumage ;  $X = 0$  mm ;  $Y = 0$  mm ;  $e_{spect} = 30 \mu\text{m}$ .  
De 0,1 à 0,5 bar :  $F_G = 31,94 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ; Pour 1 bar :  $F_G = 22,94 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .

## 4.8.7.4 Variations temporelles des raies d'argon

Les variations temporelles des raies 696,5 nm d'Ar I et 480,6 nm d'Ar II sont représentées respectivement sur la *Figure 4-38 a)* et la *Figure 4-38 b)*, au centre du plasma après un processus d'inversion d'Abel. Les lignes de base représentent l'émission du fond continu provenant du rayonnement de type Bremsstrahlung des électrons (transitions libres-libres) et de la recombinaison radiative (transitions libres-liés) [175]. Ce continuum est d'autant plus important que les délais après l'allumage sont faibles. En parallèle, le plasma est fortement ionisé et les raies d'argon sont très élargies et considérablement décalées par effet Stark, par rapport à leurs longueurs d'onde théoriques respectives : vers le rouge pour la raie 696,5 nm d'Ar I, et vers le bleu pour la raie 480,6 nm d'Ar II.

Entre 50 ns et 100 ns, l'intensité de la raie 480,6 nm d'Ar II augmente en raison de la recombinaison entre les électrons et les Ar III (argons deux fois ionisés) probablement présents dans les premiers instants après la formation du plasma. Après 100 ns, l'intensité de la raie 480,6 nm d'Ar II diminue à nouveau en raison du refroidissement du plasma et des processus de recombinaison (électron-Ar II). Cela entraîne une augmentation de l'intensité de la raie 696,5 nm d'Ar I jusqu'à l'extinction du plasma. La densité électronique diminue dans le temps et les effets Stark deviennent négligeables, la largeur de la raie d'argon neutre tendant alors vers la largeur de la fonction d'appareil égale à 0,5 Å.

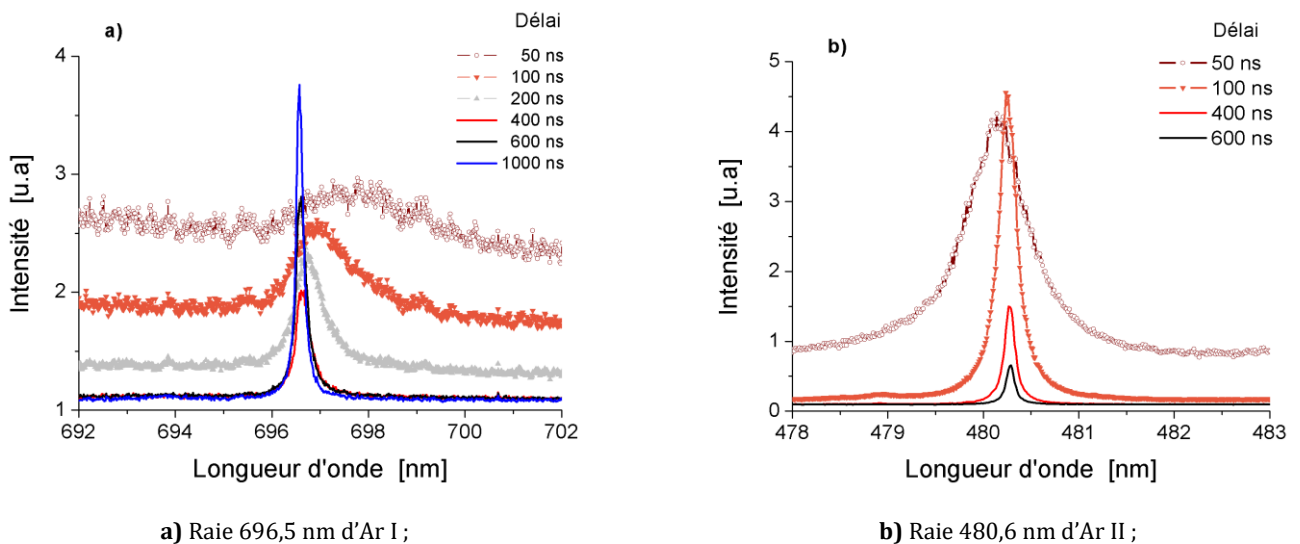


Figure 4-38 : Variations temporelles des raies d'argon au centre du plasma ; Pression d'argon = 0,4 bar ;  $X = 0$  mm ;  $Y = 0$  mm ;  $F_G = 31,94$  kJ.cm<sup>-2</sup>.

## 4.8.7.5 Vérification de l'auto-absorption

Pour déterminer les élargissements Stark, il est nécessaire de vérifier l'absence d'auto-absorptions pouvant, le cas échéant, modifier artificiellement les valeurs de largeurs à mi-hauteur des raies d'émission. Les phénomènes d'auto-absorption concernent principalement les raies d'émission avec de grandes probabilités de transition et de faibles niveaux d'énergie d'excitation [176] telles que la raie 696,5 nm d'Ar I (cf. *Tableau 11*). L'auto-absorption est vérifiée en comparant l'émission directe d'une raie donnée avec son émission renvoyée dans le plasma. Ce renvoi d'émission est réalisé avec un miroir réfléchissant placé derrière le plasma et une lentille de focalisation (cf. miroir M1 et lentille L1 de la *Figure 4-7*). La *Figure 4-39* et la *Figure 4-40* présentent respectivement les intensités des raies 696,5 nm d'Ar I et 480,6 nm d'Ar II avec et sans miroir réfléchissant ainsi que leurs rapports à différents délais. L'intensité de chaque raie d'émission devrait être doublée en présence du système de renvoi d'émission (miroir et lentille), néanmoins, la lumière renvoyée est partiellement perdue par absorption ou par réflexion sur le chemin optique. Pour la raie 696,5 nm d'Ar I, le rapport entre l'intensité lumineuse avec miroir et celle sans miroir est constant autour de la longueur d'onde centrale (zone délimitée en rouge), cela indique une absence d'auto-absorption. Nous pouvons remarquer que le rapport signal/bruit est relativement faible pour l'intensité de la raie 480,6 nm d'Ar II. Cependant, lorsque ce rapport augmente, le rapport entre l'intensité lumineuse avec miroir et celle sans miroir est également constant autour de la longueur d'onde centrale. De plus, les Ar II occupent une zone limitée dans le plasma d'argon. Par conséquent, nous supposons que la raie ionique n'est pas non plus auto-absorbée.

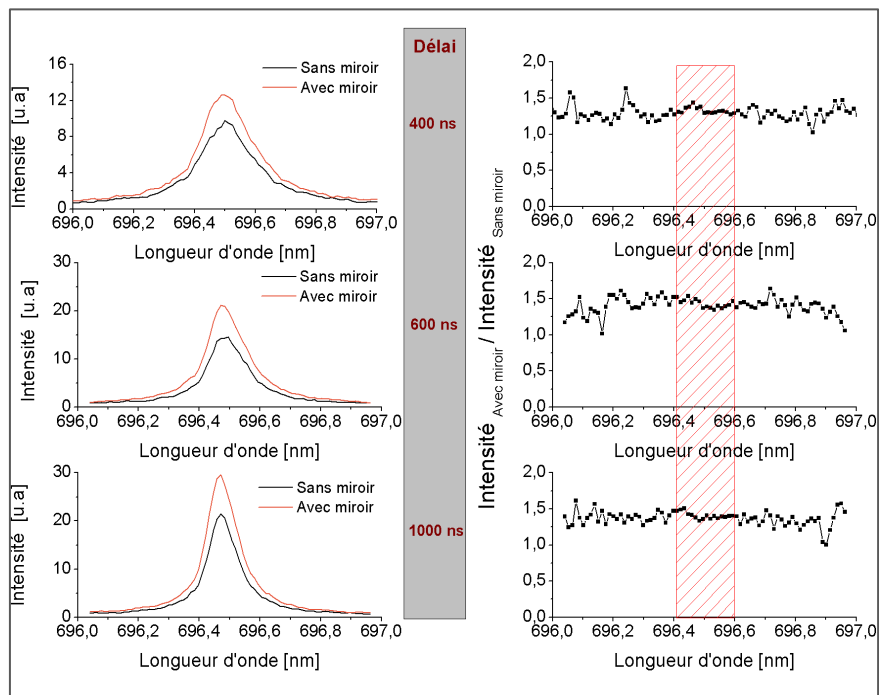


Figure 4-39 : Variations d'intensité de la raie 696,5 nm d'Ar I pour différents délais et les rapports d'intensité entre l'intensité lumineuse avec miroir et celle sans miroir ; pression d'argon = 0,4 bar ;  $X = 0$  mm ;  $Y = 0$  mm ;  $F_G = 67,48$  kJ.cm<sup>-2</sup>.

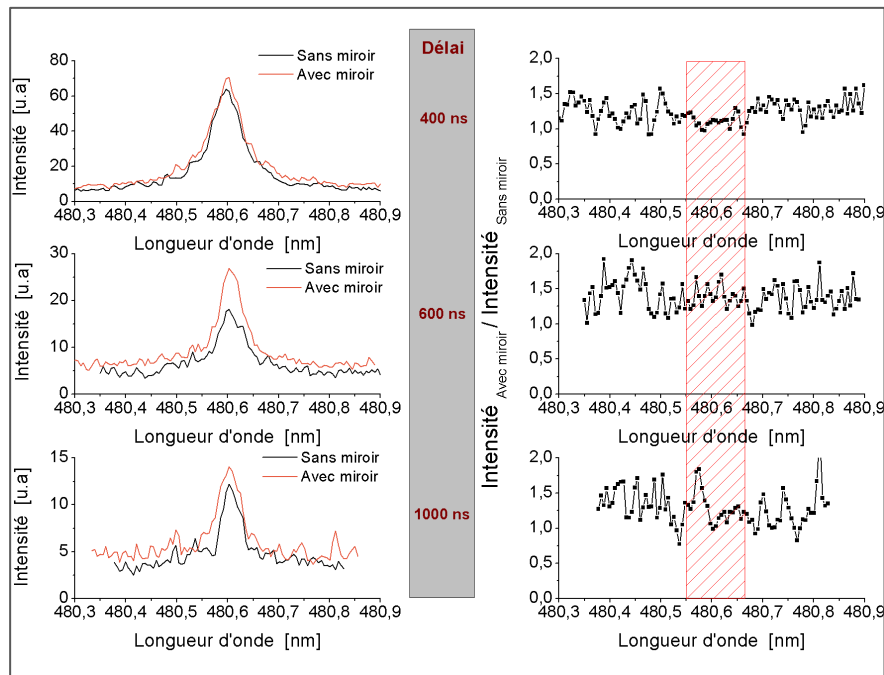


Figure 4-40 : Variations d'intensité de la raie 480,6 nm d'Ar II pour différents délais et les rapports d'intensité entre l'intensité lumineuse avec miroir et celle sans miroir ; pression d'argon = 0,4 bar ;  $X = 0$  mm ;  $Y = 0$  mm ;  $F_G = 67,48$  kJ.cm<sup>-2</sup>.

#### 4.8.7.6 Variations temporelles des spectres de diffusion Thomson

La *Figure 4-41 a)* montre le plasma généré et sa partie centrale sondée par diffusion Thomson. Le spectre de diffusion Thomson représenté sur la *Figure 4-41 b)* comporte une partie de Diffusion Thomson Electronique (DTE) où les "satellites électroniques" sont symétriques par rapport à la longueur d'onde centrale à 532 nm. Les profils des satellites électroniques suivant la direction  $Y$  sont relativement aplatis, ce qui traduit la faible variation spatiale des paramètres électroniques autour du centre du plasma. La Diffusion Thomson Ionique (DTI) ainsi que la Diffusion Rayleigh (DR) sont également présentes sur la *Figure 4-41 b)*. La DTI n'est pas spectralement séparée de la DR du laser sonde dans nos conditions expérimentales. Pour déterminer la densité électronique  $N_e$  et la température électronique  $T_e$ , nous utilisons la DTE. L'évolution temporelle des paramètres électroniques est toujours obtenue en ajustant le spectre expérimental au centre du plasma ( $X = 0$  mm ;  $Y = Z = 0$  mm) avec un spectre simulé, pour chaque délai (cf. *Figure 4-41 c)*). La position spectrale et la forme des satellites électroniques dépendent des paramètres du plasma qui diminuent dans le temps, ce qui se traduit par le rapprochement des satellites électroniques vers la longueur d'onde centrale à 532 nm.

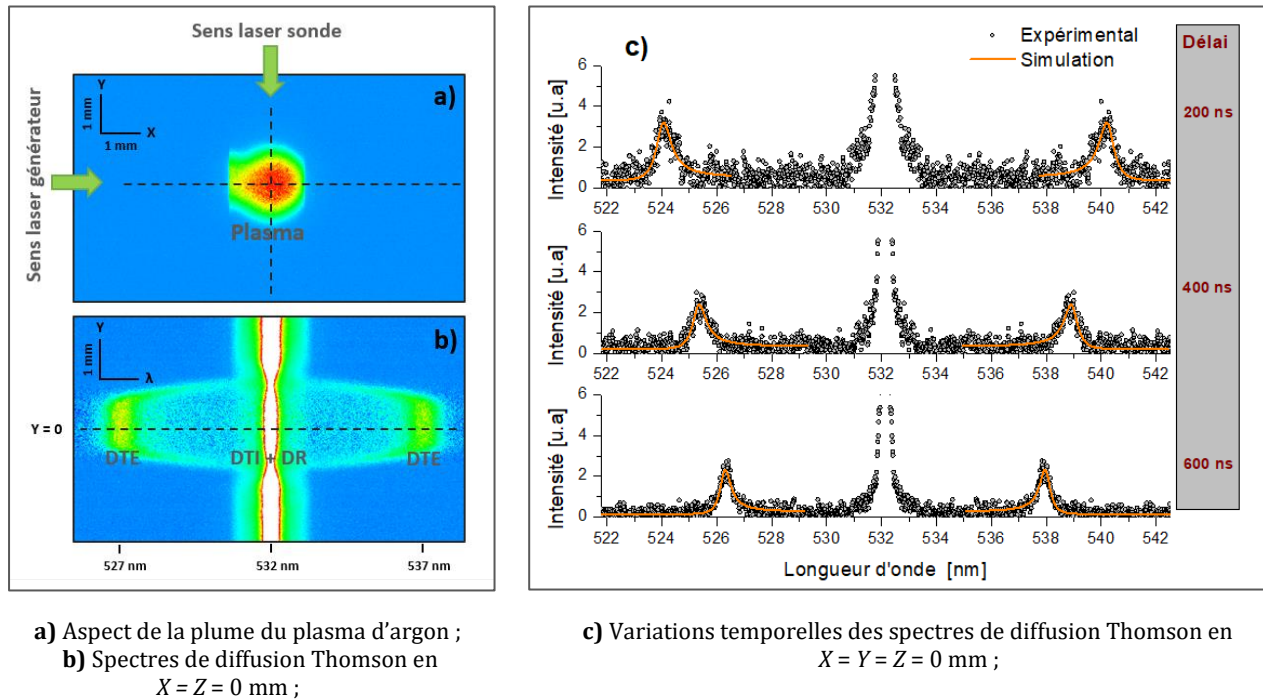


Figure 4-41 : Étude du plasma d'argon par diffusion Thomson ;  $t_{gd} = 1 \mu\text{s}$  (pour a) et b)) ; Réseau de 1200 traits. $\text{mm}^{-1}$  (pour b) et c)) ;  $F_G = 67,48 \text{ kJ}\cdot\text{cm}^{-2}$  ;  $F_S = 0,28 \text{ kJ}\cdot\text{cm}^{-2}$  ; Pression d'argon = 0,4 bar.

#### 4.8.7.7 Résultats

Les densités électroniques  $N_e^{DT}$  et les températures électroniques  $T_e^{DT}$  ont été mesurées au centre du plasma en utilisant la technique de DT. Les premiers instants de vie du plasma, c'est-à-dire les délais inférieurs à 200 ns, sont particulièrement intéressants à cause des fortes valeurs de densités électroniques dans le plasma. Cependant, la taille de ce dernier est si petite aux premiers instants que les signaux de DTE ne sont pas exploitables. La technique de DTE est donc utilisée pour caractériser le plasma uniquement entre 200 ns et 14  $\mu\text{s}$ . L'évaluation des paramètres du plasma aux premiers instants (délais 100 ns et 140 ns), se fait ensuite par une extrapolation de la « première loi puissance » suivie par  $N_e^{DT}$  (cf. Figure 4-42 a)) et  $T_e^{DT}$  (cf. Figure 4-42 b)). En revanche, au-delà de 1  $\mu\text{s}$ , les paramètres électroniques suivent une « deuxième loi de puissance », comme cela a déjà été précédemment observé pour la température (cf. paragraphe 4.8.4.2).

Les valeurs numériques des densités électroniques et températures, ainsi que des paramètres Stark déterminés simultanément par SOE, sont représentés sur la Figure 4-43 et la Figure 4-44, et données dans le Tableau 11 et le Tableau 12, respectivement pour les raies 696,5 nm d'Ar I et 480,6 nm d'Ar II.



Les élargissements et déplacements Stark de la raie d'argon neutre à 696,5 nm suivent des relations linéaires en fonction de la densité électronique pour des températures électroniques comprises entre  $10^3$  K et  $10^5$  K, selon les équations suivantes :

$$\Delta\lambda_S^{Ar I} [\text{Å}] = 1,01(\pm 0,01) \times N_e [10^{17} \text{cm}^{-3}] \quad 4.3$$

$$\Delta d_S^{Ar I} [\text{Å}] = 3,25(\pm 0,04) \times 10^{-1} \times N_e [10^{17} \text{cm}^{-3}] \quad 4.4$$

Ces résultats expérimentaux sont comparables à ceux répertoriés par Konjevic et al. [22] et Pellerin et al. [23], à faibles densités électroniques. Clairement, nos résultats s'écartent de ceux de Vitel et Skowronek [172], de Siyacoun [177] et de Valognes et al. [174] qui ont réalisé leurs expériences sur des plasmas produits dans des lampes à tubes flash, permettant d'obtenir des densités électroniques très élevées. Il faut noter que Vitel et Skowronek [172], et Siyacoun [177] ont travaillé à différentes pressions (de 50 à 400 torr, et notamment à 200 torr, qui conduit aux plus grandes disparités avec la linéarité) pour obtenir des densités électroniques élevées (de  $5,7$  à  $15,7 \times 10^{23} \text{m}^{-3}$ ), mesurées à partir du FWHM de la raie  $H\alpha$ , mais également de l'intensité du continuum entre 360,0 nm et 385,0 nm, et de l'interférométrie laser à  $\lambda = 3,39 \mu\text{m}$  [172]. Les températures (de 12000 K à 30000 K) sont alors déduites de l'équation de Saha ou de l'intensité des raies infra-rouges d'Ar I optiquement épaisses. Les enregistrements des raies se font latéralement, ces dernières sont corrigées de l'auto-absorption et ajustées à des profils lorentziens après soustraction du continuum. L'effet du transport de rayonnement est pris en compte à l'aide d'une solution simplifiée de l'équation de transfert radiatif [178]. Selon Vitel [179], Vitel et Skowronek [172], et Siyacoun [177], l'écart significatif, par rapport à la dépendance linéaire des  $\Delta\lambda_S$  mesurés aux densités électroniques élevées, serait lié au fait que la corrélation entre les particules chargées tend à diminuer l'influence des collisions dans l'élargissement Stark. Néanmoins, Uzelac et Konjevic [180] expliquent les observations de Vitel [179], de Vitel et Skowronek [172], et de Siyacoun [177] par un artefact dans l'évaluation des données, en particulier dans les hypothèses concernant le transport du rayonnement par les couches de plasma observées.

Quant aux élargissements et déplacements Stark calculés avec la théorie de Griem [21], ils sont environ deux fois plus importants que ceux que nous avons mesurés. L'existence de certaines divergences entre les mesures expérimentales des paramètres Stark et leur calcul par l'approche théorique de Griem est bien connue dans la littérature [181]. Cela avait notamment déjà été observé par Pellerin et al. [23] avec un élargissement Stark inférieur d'un facteur d'environ 1,55 par rapport à la théorie de Griem.

Contrairement à la raie 696,5 nm d'Ar I, la théorie de Griem n'est pas applicable à la raie 480,6 nm d'Ar II car son paramètre d'élargissement dû aux ions  $\alpha_0$  est inférieur à 0,02 et ne remplit donc pas la condition  $0,05 \leq \alpha_0 \leq 0,5$  (cf. paragraphe 2.1.4.3). Néanmoins, ses paramètres Stark suivent aussi des évolutions linéaires en fonction de la densité électronique selon les équations suivantes :

$$\Delta\lambda_S^{Ar II} [\text{Å}] = 2,62(\pm 0,08) \times 10^{-1} \times N_e [10^{17} \text{cm}^{-3}] \quad 4.5$$

$$\Delta d_S^{Ar II} [\text{\AA}] = -2,74(\pm 0,09) \times 10^{-2} \times N_e [10^{17} \text{cm}^{-3}] \quad 4.6$$

Ces résultats sont comparables aux paramètres Stark mesurés dans une lampe à décharge pulsée par Aparicio et al. [182], et à ceux mesurés par Pellerin et al. [218] dans un arc électrique, spécialement à faible densité électronique. Nos valeurs d'élargissement Stark sont également en conformité avec Vitel et Skowronek [172], contrairement au déplacement Stark où apparaît une nette divergence.

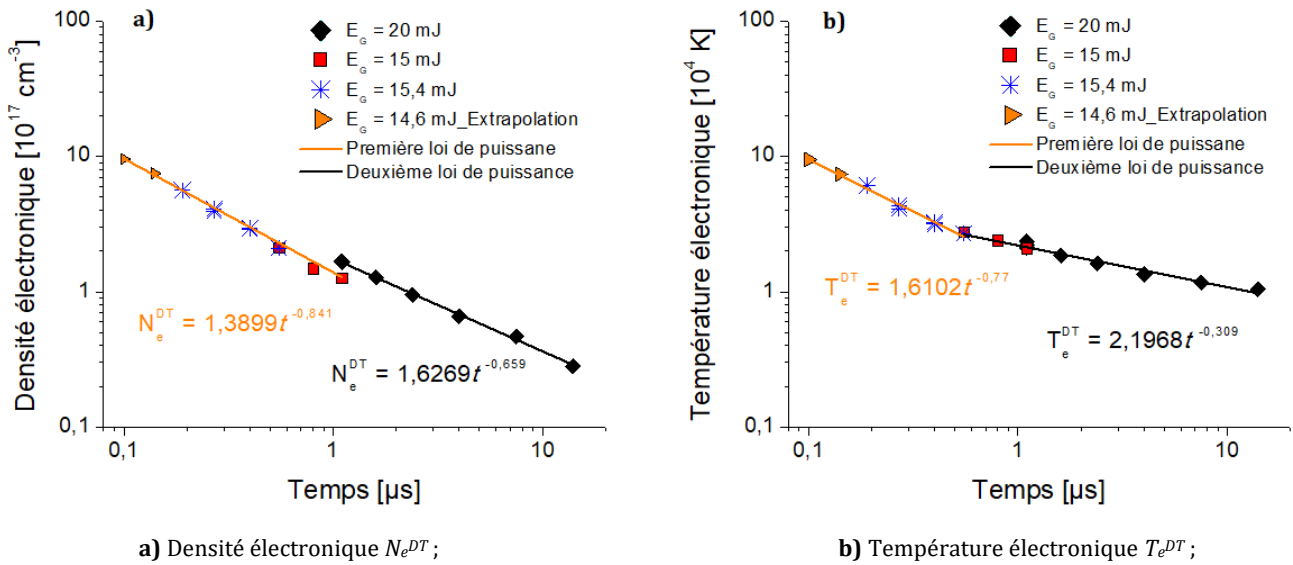


Figure 4-42 : Évolution temporelle des paramètres électroniques déterminés par diffusion Thomson ;  $E_G$  adaptée à la stabilisation spatiale du plasma ;  $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ . Dans les formules :  $T_e^{DT}$  en [K],  $N_e^{DT}$  en [ $10^{17} \text{cm}^{-3}$ ] et  $t$  en [ $\mu\text{s}$ ].

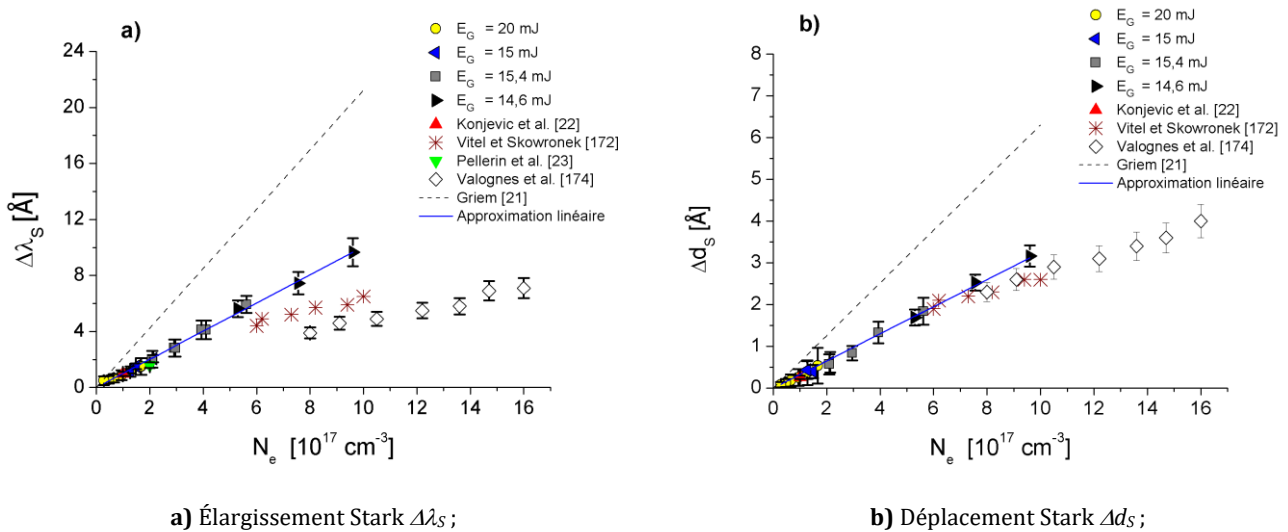


Figure 4-43 : Paramètres Stark de la raie 696,5 nm d'Ar I en fonction de la densité électronique ;  $E_G$  adaptée à la stabilisation spatiale du plasma ;  $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .

## Partie 4 : Étude des Plasmas Induits par Laser (PILs) par SOE et DT

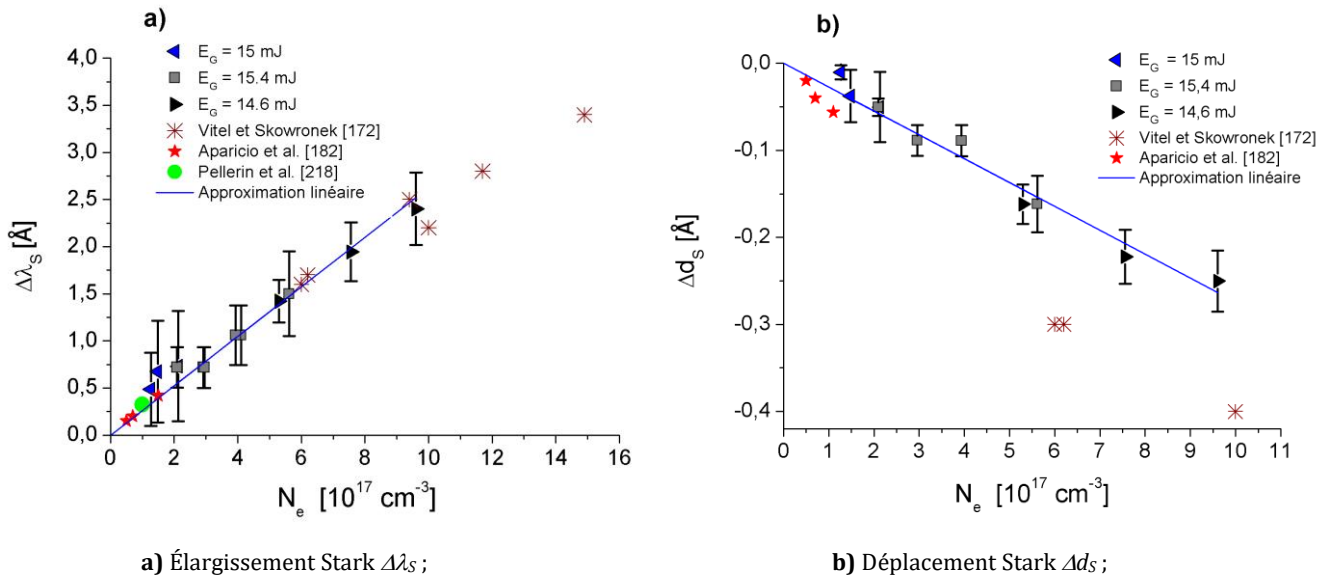


Figure 4-44 : Paramètres Stark de la raie 480,6 nm d'Ar II en fonction de la densité électronique ;  $E_G$  adaptée à la stabilisation spatiale du plasma ;  $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .

$T_e^{DT}$ [K]	$N_e^{DT}$ [ $10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ]	$\Delta\lambda_s$ [Å]	Erreur sur $\Delta\lambda_s$	$\Delta d_s$ [Å]	Erreur sur $\Delta d_s$
≈ 95000	≈ 9,61	9,66	B	3,16	B
≈ 74000	≈ 7,56	7,44	B	2,52	B
59400	5,29	5,62	B	1,69	C
60800	5,62	5,93	B	1,84	B
43700	3,94	4,11	B	1,33	C
31700	2,96	2,82	A	0,84	B
26900	2,09	2,02	B	0,57	B
27700	2,13	2,05	B	0,62	B
24000	1,48	1,52	B	0,39	B
21000	1,27	1,17	B	0,43	B
21200	1,66	1,51	B	0,53	B
18500	1,28	1,14	B	0,37	B
16200	0,94	0,88	B	0,25	B
13400	0,66	0,67	B	0,18	B
11700	0,47	0,56	B	0,12	C
10400	0,28	0,49	B	0,08	C

Tableau 11 : Paramètres Stark de la raie 696,5 nm d'Ar I pour différentes densités et températures électroniques ; Erreurs sur  $\Delta\lambda_s$  et  $\Delta d_s \leq 5 \%$  (A) ; Erreurs sur  $\Delta\lambda_s$  et  $\Delta d_s \leq 10 \%$  (B) ; Erreurs sur  $\Delta\lambda_s$  et  $\Delta d_s \leq 25 \%$  (C).

$T_e^{DT}$ [K]	$N_e^{DT}$ [ $10^{17}$ cm $^{-3}$ ]	$\Delta\lambda_s$ [Å]	Erreur sur $\Delta\lambda_s$	$\Delta d_s$ [Å]	Erreur sur $\Delta d_s$
≈ 95000	≈ 9,61	2,4	C	-0,25	C
≈ 74000	≈ 7,56	1,94	C	-0,22	C
59400	5,29	1,42	C	-0,16	C
60800	5,62	1,5	B	-0,16	B
43700	3,94	1,06	C	-0,09	C
31700	2,96	0,72	B	-0,09	C
26900	2,09	0,72	C	-0,05	C
27700	2,13	0,73	C	-0,05	C
24000	1,48	0,67	C	-0,04	C
21000	1,27	0,49	C	-0,01	B

Tableau 12 : Paramètres Stark de la raie 480,6 nm d'Ar II pour différentes densités et températures électroniques ; Erreurs sur  $\Delta\lambda_s$  et  $\Delta d_s \leq 5\%$  (A) ; Erreurs sur  $\Delta\lambda_s$  et  $\Delta d_s \leq 10\%$  (B) ; Erreurs sur  $\Delta\lambda_s$  et  $\Delta d_s \leq 25\%$  (C).

Pour évaluer l'effet de la température électronique sur les paramètres Stark, nous avons tracé les paramètres Stark des deux raies étudiées normalisés à  $N_e^{DT}$ , en fonction de la température électronique (cf. *Figure 4-45* et *Figure 4-46*). Malgré des marges d'erreur relativement importantes à basse température électronique, il existe une faible dépendance des paramètres Stark avec la température électronique entre  $10^4$  K et  $10^5$  K, pour les raies d'émission étudiées. En particulier, la comparaison avec Pellerin et al. [23] pour un élargissement Stark normalisé à  $N_e = 10^{17}$  cm $^{-3}$  (pour  $T_e = 13000$  K) semble proche de nos résultats, même pour une extrapolation aux températures supérieures.

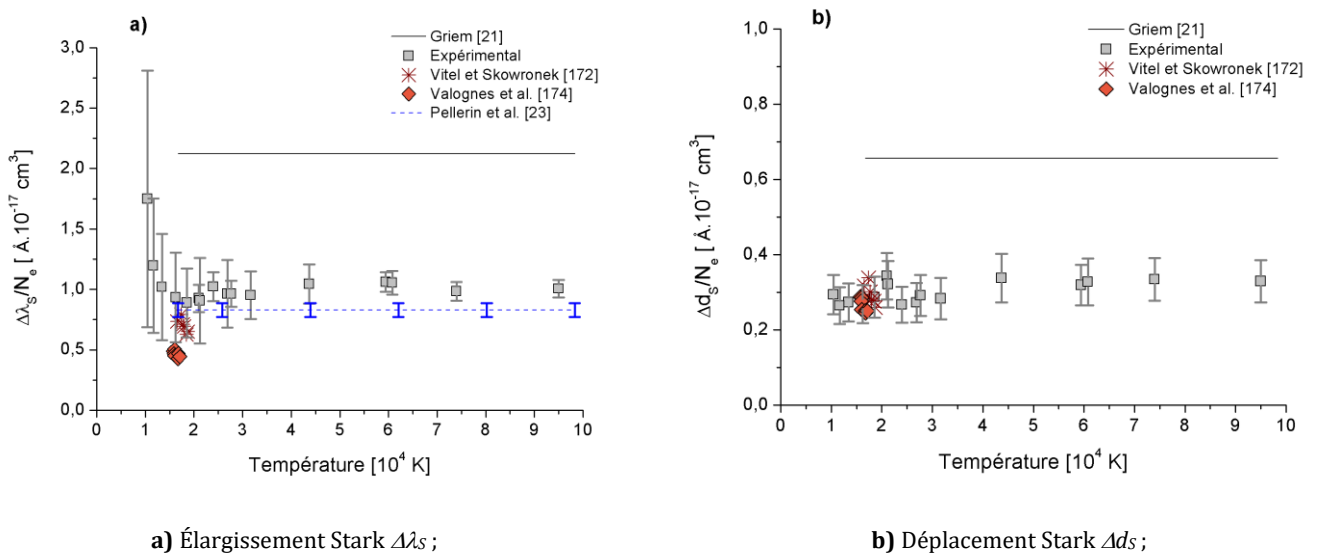


Figure 4-45 : Raie 696,5 nm d'Ar I : Paramètres Stark normalisés à  $N_e^{DT}$  en fonction de la température électronique ;  $E_C$  adaptée à la stabilisation spatiale du plasma ;  $F_S = 0,28$  kJ.cm $^{-2}$ .

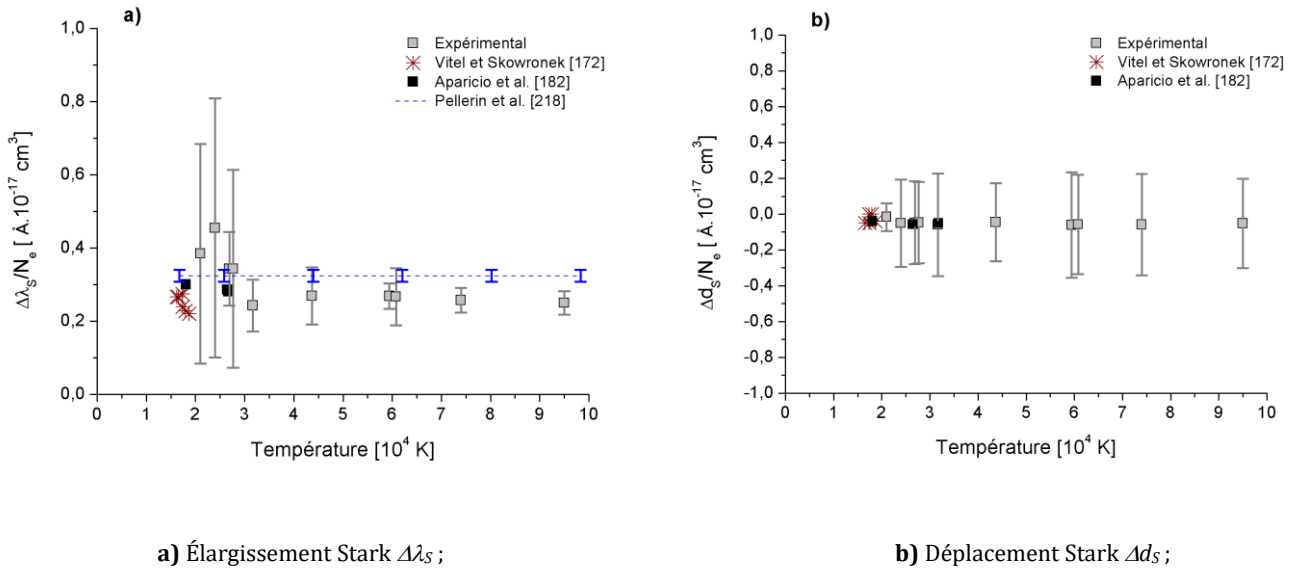


Figure 4-46 : Raie 480,6 nm d'Ar II : Paramètres Stark normalisés à  $N_e^{DT}$  en fonction de la température électronique ;  $E_G$  adaptée à la stabilisation spatiale du plasma ;  $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .

#### 4.8.7.8 Conclusion

Les techniques de SOE et de DT peuvent être combinées pour diagnostiquer des plasmas induits par laser mais aussi pour fournir des données spectroscopiques d'intérêt comme ce fût le cas ici pour les deux raies d'argon. Les conclusions de Vitel et Skowronek [172] suggérant une non-linéarité des paramètres Stark pour des densités électroniques relativement élevées n'ont pas été confirmées. En effet, les paramètres Stark des raies 696,5 nm d'Ar I et 480,6 nm d'Ar II suivent une évolution linéaire en fonction de la densité électronique jusqu'à  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . Cette dépendance linéaire n'est pas affectée par la température électronique, même à  $10^5 \text{ K}$ .

Néanmoins, il est encore difficile de trouver dans la littérature des données de paramètres Stark à haute densité électronique, en particulier sur des PILs afin de les comparer avec nos résultats expérimentaux.

En conclusion, la sous-évaluation de  $N_e^{Ar I}$  observée dans l'étude du plasma d'argon (cf. Figure 4-36) ne serait pas due à une rupture de la linéarité de l'élargissement Stark à partir d'une certaine densité électronique ou même d'une forte dépendance en température de son élargissement normalisé. Nous retenons donc l'hypothèse d'incertitudes de mesure beaucoup plus élevées que celles envisagées dans la sous-section 4.8.3, et qu'il est nécessaire de bien choisir les raies à utiliser aux différents instants du plasma pour en évaluer la densité électronique. Quant à la température, il reste très délicat d'en évaluer sa valeur uniquement par des méthodes classiques de spectroscopie optique d'émission.

#### 4.8.8 Critères de vérification de l'ETL

L'existence de l'ETL est l'hypothèse de base pour caractériser des plasmas par SOE ou des matériaux par LIBS. L'un des critères de vérification de l'ETL les plus utilisés est le critère de McWhirter [5] (cf. paragraphe 1.4.1.1) qui repose sur la prédominance des processus collisionnels sur les processus radiatifs, ce qui traduit l'existence d'une densité électronique minimale requise pour atteindre l'ETL. Dans nos conditions expérimentales, cette densité limite au centre du plasma, serait de  $1,5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  à 400 ns et de  $8 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  à 40  $\mu\text{s}$ , ce qui est un à deux ordres de grandeurs inférieur aux densités électroniques mesurées par SOE ou par DT. Ainsi, de façon générale, le plasma d'argon vérifie spatialement et temporellement le critère de McWhirter.

Cependant, en ce qui concerne les plasmas transitoires tels que les PILs, le critère de McWhirter n'est pas suffisant. En effet, Cristoforetti et al. [9] ont montré l'importance des critères supplémentaires tels que la stationnarité et l'homogénéité du plasma. Ces deux critères reposent sur la faible variation des paramètres du plasma dans le temps et dans l'espace respectivement devant les temps de relaxation  $\tau_{rel}$  et les longueurs de diffusion  $\Lambda$  des espèces qui composent le plasma. Pour un plasma homogène et transitoire, nous rappelons que le critère de stationnarité est donné par l'équation 1.35.

Les critères de stationnarité et d'homogénéité ont été étudiés par A.F. Souguez [17] pour un plasma d'argon à pression atmosphérique induit par laser Nd : YAG à 532 nm. Il a ainsi montré que le plasma d'argon était homogène à tout instant mais stationnaire uniquement à des délais inférieurs à 500 ns. Par ailleurs, les paramètres de notre plasma d'argon varient relativement peu dans l'espace en comparaison avec les variations temporelles. Par exemple, à un délai de 400 ns, les longueurs de diffusion sont de l'ordre de  $10^{-12}$  m pour Ar I et de l'ordre de  $10^{-11}$  m pour Ar II entre le centre du plasma et sa périphérie. L'écart à l'ETL résiderait donc dans le critère de stationnarité.

Nous avons calculé, en utilisant la température électronique obtenue par DT, les temps de relaxation  $\tau_{rel}^{Ar I}$  de la raie 106,66 nm d'Ar I, représentés sur la *Figure 4-47 a)* et les temps de relaxation  $\tau_{rel}^{Ar II}$  de la raie 91,97 nm d'Ar II, représentés sur la *Figure 4-47 b)*. Ces deux raies correspondent aux transitions entre les états fondamentaux et les premiers niveaux excités des espèces Ar I et Ar II, respectivement. Nous remarquons que les temps de relaxation sont faibles dans les premiers instants mais augmentent très vite dans le temps : après 400 ns,  $\tau_{rel}^{Ar I}$  est de l'ordre de 18 ns alors que  $\tau_{rel}^{Ar II}$  est de l'ordre de 220 ns. Pour un délai de 4  $\mu\text{s}$ ,  $\tau_{rel}^{Ar I}$  vaut environ 10  $\mu\text{s}$  alors que  $\tau_{rel}^{Ar II}$  est proche de 260  $\mu\text{s}$ .

Nous avons utilisé ces temps de relaxation pour vérifier le critère de stationnarité en calculant les « taux de variation temporelle » de la température électronique (*Figure 4-48 a)*) et de la densité électronique (*Figure 4-48 b)*), par rapport aux temps de relaxation. Pour les délais supérieurs à 3  $\mu\text{s}$ , les temps de relaxation deviennent supérieurs à la durée de vie du plasma, d'où l'absence de données. Hormis dans les premiers instants de l'étincelle, le critère de stationnarité n'est pas vérifié pour les raies d'argon choisies car les taux de variation temporelle des paramètres du plasma, par rapport aux temps de relaxation, ne sont pas négligeables devant l'unité, surtout pour la raie 91,97 nm d'Ar II. Le plasma d'argon est donc considéré comme étant hors d'ETL.

## Partie 4 : Étude des Plasmas Induits par Laser (PILs) par SOE et DT

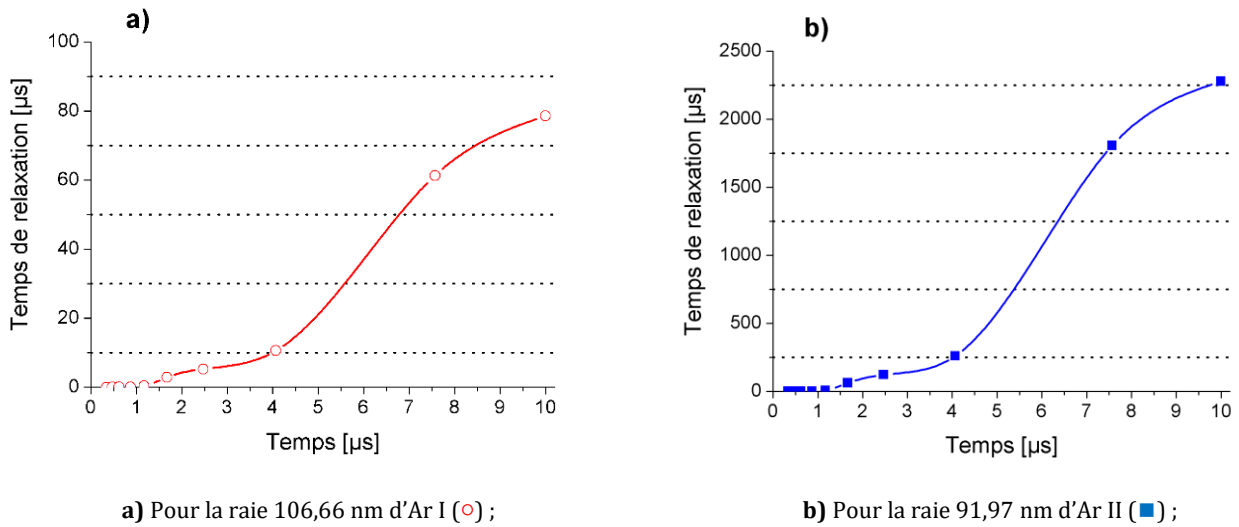


Figure 4-47 : Évolution temporelle des temps de relaxation  $\tau_{rel}$  au centre du plasma.

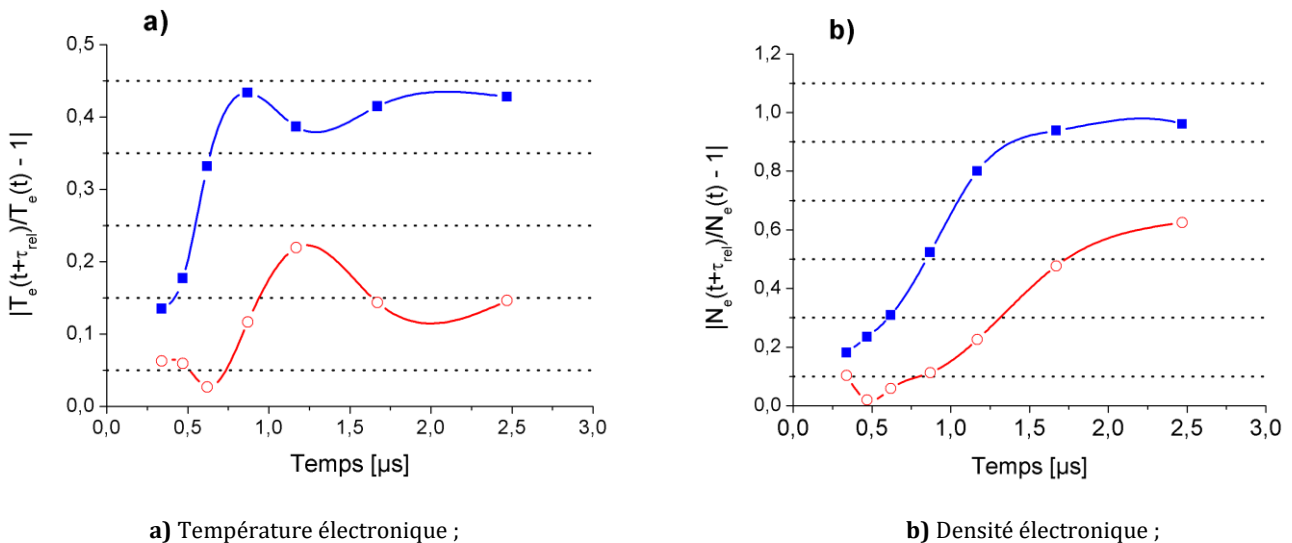


Figure 4-48 : Évolution des taux de variations temporelles des paramètres du plasma par rapport aux temps de relaxation au centre du plasma pour les raies 106,66 nm d'Ar I (○) et 91,97 nm d'Ar II (■) ;  $F_G = 44,9 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ;  $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .

### 4.8.9 Conclusion

L'étude spectroscopique du plasma d'argon par SOE et par DT nous a permis d'obtenir, dans un large domaine spatio-temporel, les valeurs des différents paramètres du plasma déterminées de diverses façons. Nous avons notamment mis en évidence un fort écart entre

les températures électroniques et les températures d'excitation des particules lourdes (Ar I et Ar II) plus froides. Ce déséquilibre thermique au sein du plasma d'argon, ainsi que la non vérification du critère de stationnarité, confirment l'écart à l'ETL du plasma d'argon induit par laser également évoqué par une étude précédente [17]. En ce sens, le critère de McWhirter, qui est bien vérifié dans le plasma d'argon, reste en effet un critère nécessaire mais pas suffisant pour confirmer l'existence de l'ETL dans un plasma transitoire tel que rencontré en claquage laser dans un gaz [9].

Dans ces conditions, s'il est délicat de déterminer la température du plasma par des méthodes de spectroscopie optique d'émission, il reste possible d'évaluer la densité électronique avec une précision raisonnable, sous réserve de choisir correctement les raies thermométriques en fonction du temps de vie du plasma. En l'occurrence, même si les densités électroniques issues de la SOE et de la DT sont comparables après un délai de 1  $\mu$ s, la densité électronique  $N_e^{Ar I}$  calculée en utilisant l'élargissement Stark de la raie 696,5 nm d'Ar I semble être sous-estimée, en raison d'un faible rapport signal/bruit de l'intensité de cette raie dans les premiers instants après la formation du plasma où le taux d'ionisation est élevé.

Si l'on n'y prend pas garde, le caractère intrusif du laser sonde se manifeste par un chauffage des électrons libres qui s'intensifie avec le refroidissement du plasma. Nous n'avons pas pu quantifier l'élévation de température électronique, mais, la quantification de ce chauffage est un point d'amélioration nécessaire de la précision du diagnostic par diffusion Thomson.

Malgré tout, nous avons pu montrer l'efficacité de l'emploi simultané de la DT pour diagnostiquer le plasma, et de la SOE pour déterminer les paramètres Stark de raies spectrales, afin de proposer des valeurs précises de la dépendance de l'élargissement des raies en fonction de  $N_e$  et  $T_e$ , données indispensables pour le diagnostic des plasmas d'intérêt scientifiques ou technologiques.

## 4.9 Étude du plasma de cuivre

### 4.9.1 Introduction

Après avoir étudié un exemple de plasma induit par laser dans un gaz, nous avons décidé d'appliquer la SOE et la DT à un plasma de claquage sur cible solide. La matière solide choisie ici est le cuivre. C'est le plus ancien métal utilisé par l'homme et sa présence à l'état naturel sur terre, sa ductilité et ses fortes conductibilités thermique et électrique en ont fait, jusqu'à aujourd'hui, un matériau très largement utilisé dans l'industrie. L'ablation laser concerne de nombreuses applications comme le dépôt de couches minces par laser pulsé, la dépollution ou la fabrication de nanoparticules. De nombreuses études ont été consacrées aux PILs sur du cuivre ou sur des alliages de cuivre [183]–[187].

Dans le cadre de ce travail, il est à nouveau question de déterminer s'il existe un équilibre thermodynamique dans un plasma d'ablation induit par un laser nanoseconde sur du cuivre pur, car l'ETL est l'hypothèse de base pour déterminer la composition élémentaire des



échantillons étudiés en LIBS. Le système de création (laser Nd : YAG à 532 nm, avec une durée d'impulsion de 4 ns), d'observation et d'analyse du plasma est similaire à celui du plasma d'argon. Cependant, le plasma d'ablation est directement créé dans l'air, sans gaz de protection, afin de nous rapprocher des conditions réelles de la LIBS sur le terrain.

L'ablation laser sur une cible solide s'accompagne d'un arrachage de matière qui se manifeste, d'une part par la présence de matière au voisinage de la surface (avec de potentiels problèmes de diffusion du rayonnement laser lors du diagnostic par DT), mais aussi par la formation de cratères sur la cible. Par conséquent, chaque échantillon de cuivre de 10 mm d'épaisseur et de 20×20 mm<sup>2</sup> de surface est préalablement poli et placé sur un support en translation selon la direction d'observation (axe Z). Ce changement continu de zone d'ablation permet de maintenir des tailles des cratères plus ou moins similaires. En effet, une modification trop importante des tailles des cratères pourrait modifier la dynamique de la plume de plasma ainsi que ses paramètres. Le point de focalisation du laser générateur est avancé d'environ 1 mm dans la cible pour éviter un claquage dans le gaz ambiant (l'air).

#### 4.9.2 Évolution du plasma de cuivre par imagerie

Le dispositif expérimental est similaire à celui utilisé précédemment avec l'expandeur de faisceau du laser générateur. L'énergie par pulse du laser générateur, est fixée à  $E_G = 16$  mJ, et le « waist » du faisceau est estimé à  $\omega_G \approx 2,7 \pm 0,3$   $\mu\text{m}$  : la fluence du laser au point de focalisation est donc de l'ordre de  $F_G \approx 72$  kJ.cm<sup>-2</sup>.

L'évolution dans le temps de la forme du plasma de cuivre est représentée sur la *Figure 4-49* avec les directions respectives des lasers générateur et sonde. La formation du plasma débute par une petite étincelle qui s'expand dans l'espace de façon homogène jusqu'à un délai de 3  $\mu\text{s}$ . La plume de plasma s'étire ensuite dans la direction perpendiculaire à la surface de la cible, mais l'expansion du plasma est ralentie par le confinement apporté par le gaz ambiant et la dissipation de l'énergie thermique. Le plasma se comprime alors ensuite jusqu'à son extinction qui intervient, dans le cadre de notre étude, au bout de 40  $\mu\text{s}$ .

Les vitesses d'expansion du plasma de cuivre, représentées sur la *Figure 4-50*, décroissent exponentiellement jusqu'à environ 1  $\mu\text{s}$  en passant de 4900 m.s<sup>-1</sup> à 110 m.s<sup>-1</sup> dans la direction X et de 4300 m.s<sup>-1</sup> à 50 m.s<sup>-1</sup> dans la direction Y. Les vitesses d'expansion suivant la direction X sont similaires aux vitesses obtenues dans un plasma d'ablation d'aluminium par Cirisan [188] qui a mesuré des vitesses d'expansion allant de 4300 m.s<sup>-1</sup> à 1000 m.s<sup>-1</sup> dans les premiers 300 ns de la vie du plasma.

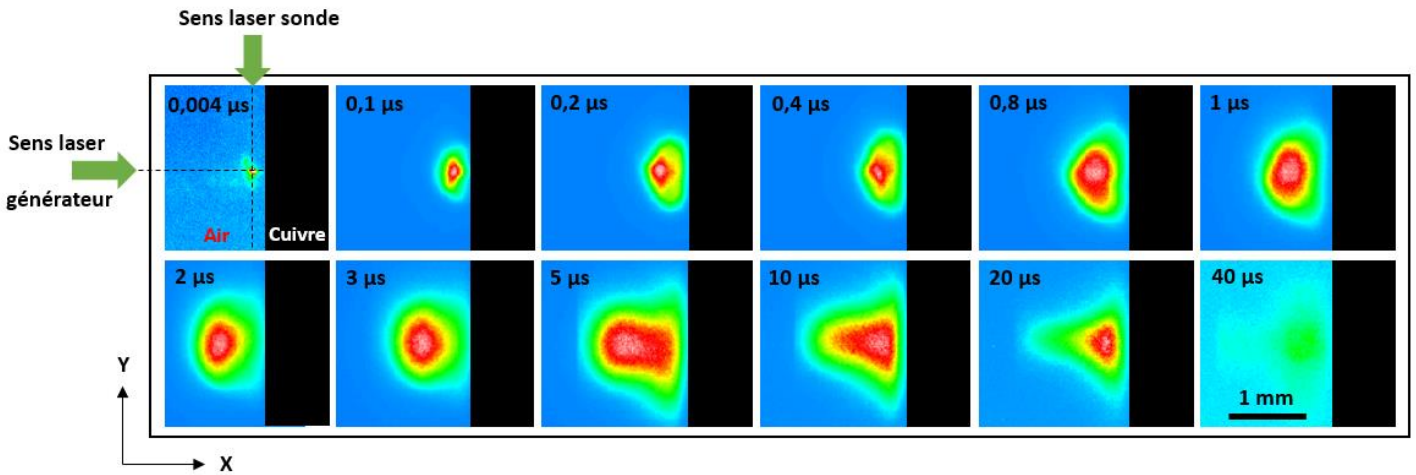


Figure 4-49 : Évolution spatio-temporelle de la plume de plasma de cuivre ;  $F_G = 72 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ;  $t_{exp} = 3 \%$  du délai.

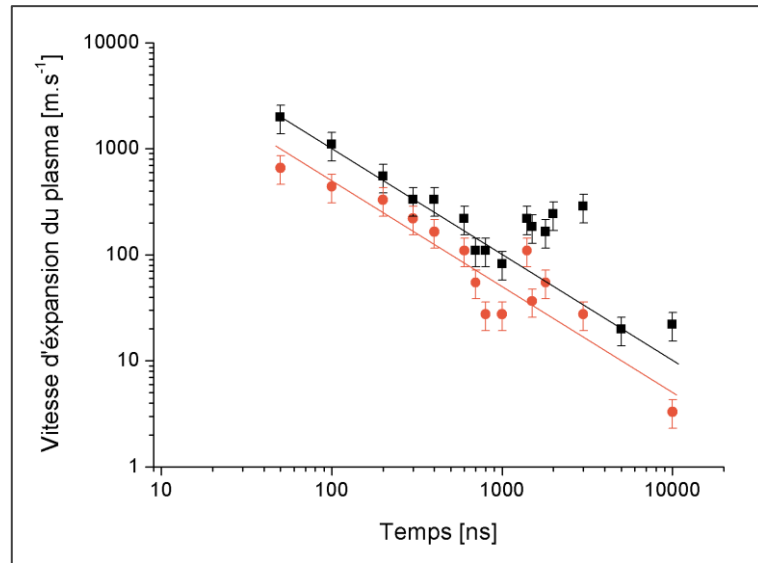


Figure 4-50 : Vitesse d'expansion du plasma de cuivre dans les axes X (■) et Y (●) en fonction du temps ;  $F_G = 72 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .

#### 4.9.3 Évolution des cratères d'ablation par imagerie

La Figure 4-52 montre l'évolution du plasma et des cratères en fonction du nombre de tirs du laser générateur sur la cible à une fréquence de 10 Hz. Les cratères sont observés par Microscope Electronique à Balayage (MEB). De 700 à 2500 tirs, le plasma devient moins

lumineux à cause de la diminution du taux de matière ablatée par le laser. En effet, l'accroissement du nombre de tirs entraîne une augmentation de la profondeur et du diamètre des cratères. Et lorsque le cratère devient plus profond, le plasma se forme au fond de celui-ci et peut alors être significativement confiné à l'intérieur, modifiant ainsi son expansion, sa température et sa densité électronique [189], [190]. La matière ablatée est fondue et éjectée du cratère, et se re-condense en partie sur les bords où se forme une grande quantité d'oxyde de cuivre.

Comme nous pouvons le voir sur la *Figure 4-53 a)*, la forme conique des cratères est caractérisée par un diamètre externe (dimension en surface de l'échantillon) et un diamètre interne (dimension au fond du cratère), qui peuvent être reliés aux caractéristiques du laser générateur. La morphologie des cratères formés par ablation laser sur l'échantillon de cuivre a ainsi été corrélée avec le profil du laser générateur (Nd : YAG à 266 nm) par Picard et al. [190] qui ont montré que, pour une irradiancance comprise entre 1 et  $11,7 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$ , le profil du cratère est très similaire au profil spatial du laser. Sur la base de ces travaux et compte tenu du fait que notre irradiancance d'ablation « théorique » est d'environ  $18 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$  (pour une fluence « théorique » de  $72 \text{ kJ.cm}^{-2}$ ), nous avons assimilé le profil des cratères formés au profil spatial du laser générateur à l'intérieur de la cible (cf. *Figure 4-51*).

Ainsi, en mesurant la taille du diamètre interne en fonction du nombre de tirs, nous pouvons déterminer la position  $X$  d'ablation correspondante. En effet, en assimilant le rayon interne avec le rayon  $R$  de la surface d'interaction du laser avec la cible, et en supposant un faisceau purement gaussien, la position  $X$  d'ablation peut être calculée par la relation suivante [145] :

$$X = X_R \sqrt{\left(\frac{R}{\omega_{0G}}\right)^2 - 1} \quad [\text{m}] \quad 4.7$$

avec

$$X_R = \frac{\pi \omega_{0G}^2}{\lambda} \quad [\text{m}] : \text{gamme de Rayleigh} \quad 4.8$$

où  $\lambda$  [m] est la longueur d'onde du laser et  $\omega_{0G}$  [m] correspond à son « waist ».

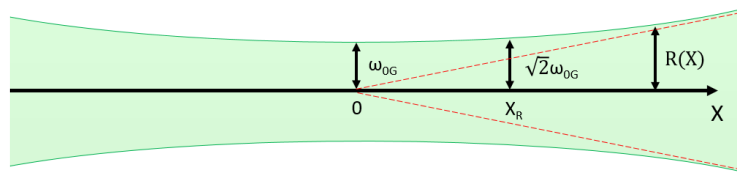
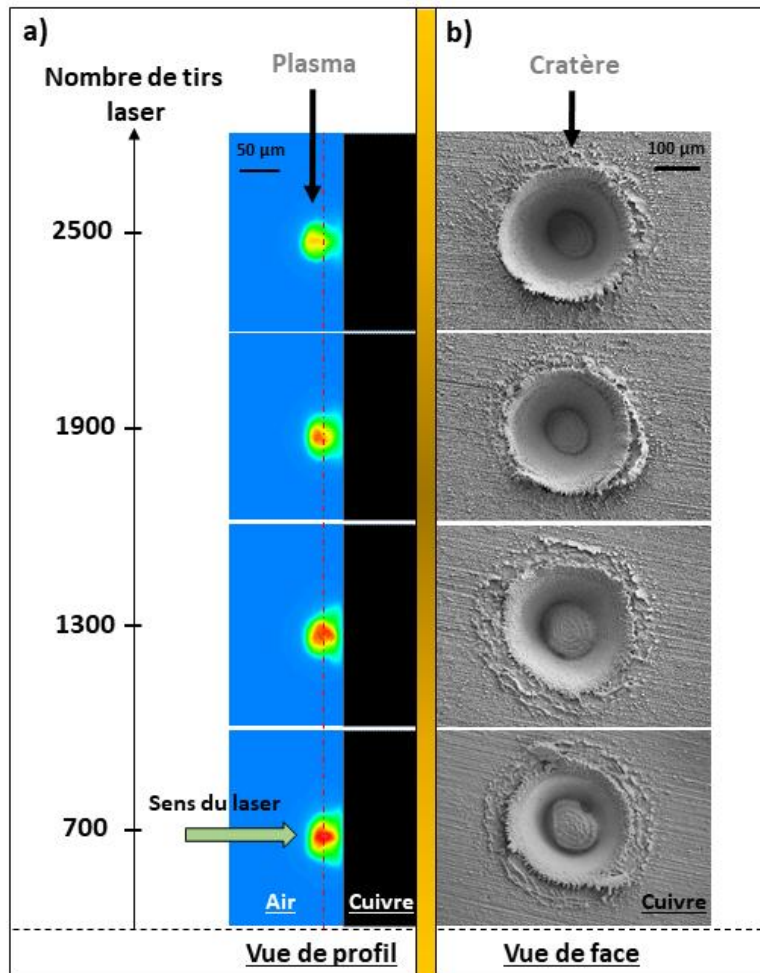


Figure 4-51 : Focalisation d'un faisceau gaussien.

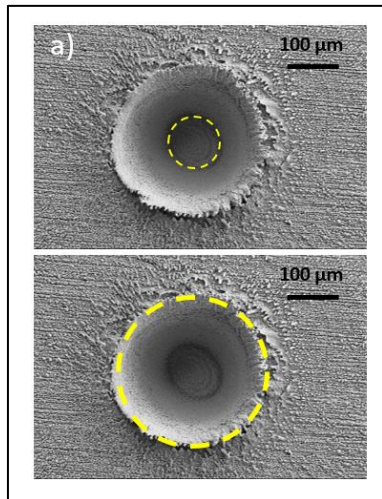
En considérant que la position  $X_0$  de la surface de la cible correspond à 0 tir laser (*i.e.*  $X_0$  est l'ordonnée à l'origine de la variation linéaire de  $X$  en fonction du nombre de tirs), et en connaissant le « waist »  $\omega_{0G}$  qui est d'environ  $2,7 \mu\text{m}$ , nous avons tracé le profil du laser dans la cible *i.e.*  $R$  en fonction de  $X$  (cf. *Figure 4-53 b*). Nous remarquons qu'en réalité le laser est focalisé à environ  $1,2 \pm 0,1 \text{ mm}$  ( $\equiv X_0$ ) dans la cible, contre l'estimation préalable d'environ  $1 \text{ mm}$ .

Ainsi, il est également possible de calculer des paramètres tels que la fluence  $F_{GN}$  au bout de  $N$  tirs, mais aussi le volume de matière ablatée (estimé comme le volume du cône tronqué de rayons  $R(X_0)$  et  $R(X)$ , et de hauteur égale à la profondeur d'ablation  $X_0 - X$ ). Ces paramètres sont consignés dans le *Tableau 13*, où nous pouvons remarquer qu'au fur et à mesure que le cratère se forme, le diamètre externe augmente tandis que le diamètre interne diminue. Il en résulte une modification de la section d'interaction cible/laser et donc une variation de la fluence. Par la suite, nous travaillons avec uniquement 100 tirs de laser avant de déplacer la cible, ce qui correspond à une fluence  $F_{G100}$  d'environ  $0,085 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .

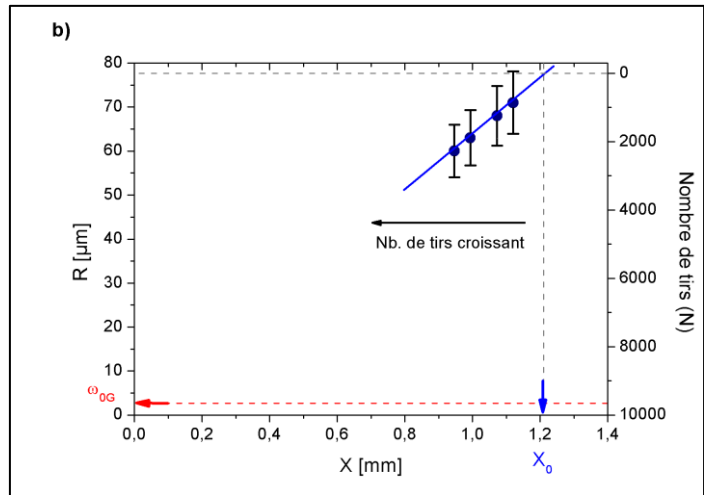


**a)** Évolution spatiale de la plume de plasma ; **b)** Évolution des cratères (par MEB) ;

Figure 4-52 : PIL sur cible de cuivre : Évolutions comparées de la plume plasma et des cratères sur la cible en fonction du nombre d'impulsions laser ;  $t_{gd} = 1 \mu\text{s}$  ;  $t_{exp} = 30 \text{ ns}$  (3 % du délai  $t_{gd}$ ).



a) Morphologie du cratère après 2500 tirs visualisé par MEB ;  
 $F_{G2500} = 0,14 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .



b) Profil spatial du laser générateur dans la cible ;

Figure 4-53 : Aspect morphologique des cratères en surface de la cible de cuivre.

Nombre de tirs	Diamètre externe [μm]	Diamètre interne [μm]	$F_{GN}$ : Fluence au bout de $N$ tirs [kJ.cm <sup>-2</sup> ]	Volume de matière ablatée [10 <sup>6</sup> μm <sup>3</sup> ]
700	307 <sup>±31</sup>	142 <sup>±14</sup>	0,10 <sup>±0,02</sup>	1,198 <sup>±0,042</sup>
1300	315 <sup>±32</sup>	136 <sup>±14</sup>	0,11 <sup>±0,02</sup>	1,916 <sup>±0,042</sup>
1900	326 <sup>±33</sup>	126 <sup>±13</sup>	0,13 <sup>±0,03</sup>	2,980 <sup>±0,043</sup>
2500	341 <sup>±34</sup>	120 <sup>±12</sup>	0,14 <sup>±0,03</sup>	3,543 <sup>±0,045</sup>

Tableau 13 : Paramètres d'ablation en fonction du nombre de tirs du laser ;  $E_G = 16 \text{ mJ}$ .

#### 4.9.4 Mesure des paramètres du plasma de cuivre par SOE

Le plasma de cuivre est étudié en utilisant le chemin optique et les instruments du dispositif expérimental présenté à la section 4.6. Le réseau de diffraction est fixé à 1200 traits.mm<sup>-1</sup> et l'ouverture de la fente d'entrée du spectromètre  $e_{spect} = 30 \text{ μm}$ . Durant l'ablation, la cible est translattée dans la direction d'observation (axe  $Z$ ) à une vitesse de 0,1 mm.s<sup>-1</sup> à l'aide d'un moteur en régime continu. L'émission lumineuse du plasma, particulièrement intense, est utilisée pour le diagnostic par SOE.

## 4.9.4.1 Spectres d'émission du plasma de cuivre

Quelques raies d'émission du plasma de cuivre sont représentées sur la *Figure 4-54*. Nous remarquons que l'émission est essentiellement composée de raies de cuivre neutre. Ces raies de Cu I sont pour la plupart très élargies, notamment dans les premiers instants de la décharge en raison de la forte densité électronique. Pour les raies dans la gamme spectrale située entre 450 ns et 460 ns. Le déplacement en longueur d'onde est très marqué et dirigé vers le rouge. L'intensité et l'élargissement des raies de Cu I décroissent au cours du temps avec l'expansion et donc le refroidissement du plasma. Le continuum d'émission décroît considérablement dans le temps. Quelques raies de Cu II, très fines, ont aussi été détectées. Cependant, leur nombre et leurs intensités lumineuses relatives n'ont pas été suffisants pour une étude spectroscopique. Par conséquent, l'étude par SOE ne portera que sur les raies de Cu I.

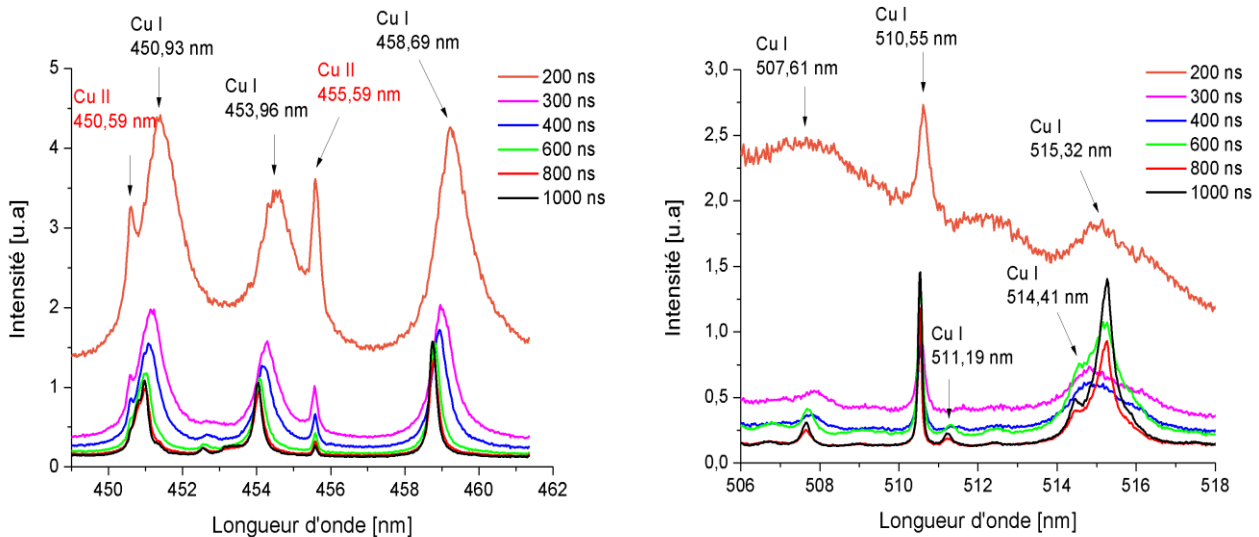


Figure 4-54 : Spectres d'émission (intégrés en Y et Z) de quelques raies de Cu I et de Cu II en fonction du temps ; X = 0 mm ; Réseau de 1200 traits.mm<sup>-1</sup> ; F<sub>C100</sub> = 0,085 kJ.cm<sup>-2</sup>.

## 4.9.4.2 Mesure de température d'excitation par graphe de Boltzmann

La température d'excitation  $T_{ex}^{Cu I}$  de Cu I est déterminée en traçant le graphe de Boltzmann des raies dont les données spectroscopiques sont présentées sur le *Tableau 14* [2]. Ces raies ont été choisies pour leur isolement en longueur d'onde afin d'éviter les effets de recouvrement, et pour le bon rapport signal/bruit de leurs intensités lumineuses. Les énergies du niveau de départ  $E_u$  des raies de Cu I choisies, sont relativement éloignées avec un écart maximal d'environ 4 eV. La linéarité du graphe de Boltzmann, dont un exemple est représenté

sur la *Figure 4-55*, est le signe de l'existence d'un équilibre d'excitation des niveaux d'énergies de Cu I.

Espèce	$\lambda_{ul}$ [nm]	$g_{ul} \times A_{ul}$ [ $10^7 \text{ s}^{-1}$ ]	$E_l$ [eV]	$E_u$ [eV]	Erreur sur $A_{ul}$
Cu I	406,26	12,6	3,81	6,86	C
Cu I	453,96	84,8	5,15	7,88	C
Cu I	458,69	19,2	5,10	7,80	C
Cu I	465,11	30,4	5,07	7,73	C
Cu I	510,55	0,8	1,38	3,81	C
Cu I	515,32	24,0	3,78	6,19	C
Cu I	570,02	0,096	1,64	3,81	C
Cu I	578,21	0,33	1,64	3,78	C

Tableau 14 : Données spectroscopiques des raies de Cu I utilisées ; Erreur sur  $A_{ul} \leq 5\%$  (A) ; Erreur sur  $A_{ul} \leq 10\%$  (B) ; Erreur sur  $A_{ul} \leq 25\%$  (C).

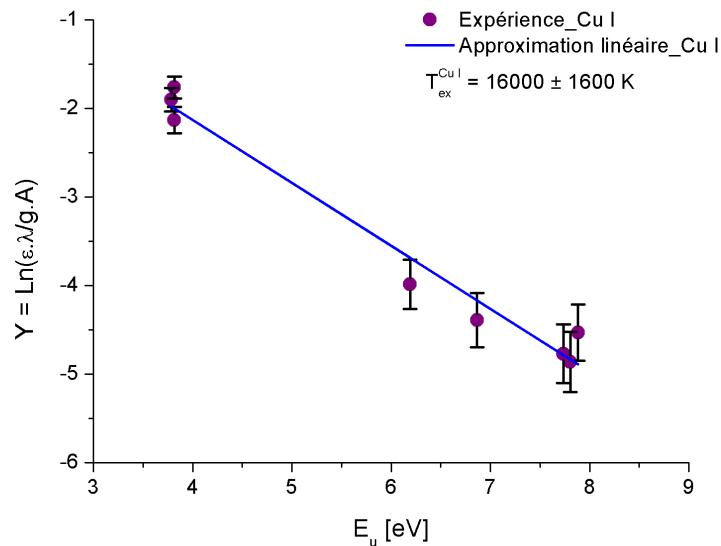


Figure 4-55 : Graphes de Boltzmann de Cu I ; délai = 1500 ns ;  $X = 0 \text{ mm}$  ;  $r = 0 \text{ mm}$  ;  $F_{G100} = 0,085 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .

La procédure d'inversion d'Abel, qui a aussi été appliquée ici, nous a permis de déterminer une répartition spatiale de la température d'excitation de Cu I à différents instants du plasma. Cette répartition spatio-temporelle de  $T_{ex}^{Cu I}$  est représentée sur la *Figure 4-56*. Nous pouvons remarquer que cette température est maximale dans les premiers instants après la formation du plasma, avec un gradient dirigé du centre du plasma vers sa périphérie. Les températures mesurées évoluent entre 46000 K à un délai de 400 ns et 8000 K à un délai de 3  $\mu$ s au centre du plasma, avec une décroissance temporelle plus forte que la décroissance spatiale. Les températures d'excitation du cuivre neutre mesurées par Hanif et al. [191] par LIBS avec un laser Nd : YAG à 532 nm, sur une cible de cuivre, évoluent entre  $11500 \pm 1200$  K et  $14700 \pm 1500$  K en fonction de l'énergie du laser générateur. Baudalet et al. [184] ont mesuré des températures d'excitation moyennes du cuivre neutre de  $30300 \pm 6400$  K par LIBS sur du cuivre solide, avec un laser à fibre dopée au Thulium à 1992 nm et avec 200 ns de durée d'impulsion laser. Ces résultats sont assez similaires aux températures d'excitation que nous avons mesurées à des délais différents.

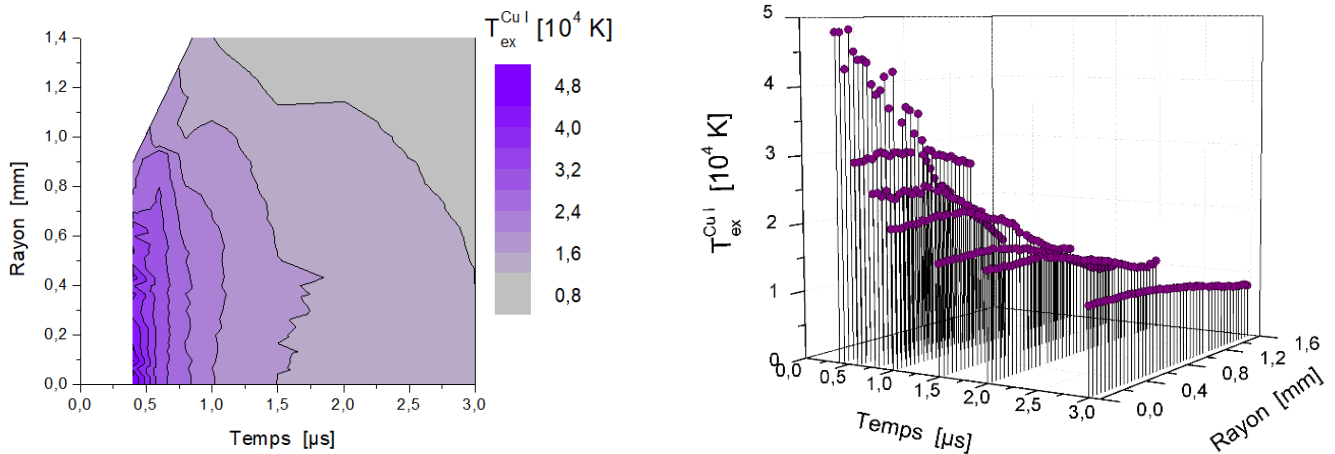


Figure 4-56 : Variations spatio-temporelles de la température d'excitation  $T_{ex}^{Cu I}$  de Cu I ;  $X = 0$  mm ;  $Z = 0$  mm ;  $F_{G100} = 0,085$  kJ.cm<sup>-2</sup>.

#### 4.9.4.3 Mesure de densité électronique par élargissement Stark

La détermination de la densité électronique a été faite en utilisant la relation de Griem (cf. *équation 2.15*) et l'élargissement Stark de la raie 510,5 nm de Cu I disponible dans la littérature :

$$\Delta\lambda_S(510,5 \text{ nm Cu I}) [\text{nm}] = 7,08 \times 10^{-7} \times T_e[\text{K}]$$

pour  $N_e = 0,1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  [192]



La répartition spatio-temporelle de la densité électronique  $N_e^{Cu I}$  issue de la raie 510,5 nm de Cu I est représentée sur la *Figure 4-57*. Les densités électroniques les plus importantes apparaissent au centre du plasma dans les tous premiers instants de sa formation, avec une valeur maximale de  $5,7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . La décroissance spatiale de  $N_e^{Cu I}$  est très forte dans les premiers instants jusqu'à 400 ns. Au-delà de 600 ns, la décroissance de  $N_e^{Cu I}$  est plus importante temporellement que spatialement et nous observons une stabilisation de la densité électronique autour de  $0,3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  après un délai de 3  $\mu\text{s}$ . Hanif et al. [191] ont mesuré une densité électronique de  $0,26 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  à une distance de 0,05 mm de la surface de l'échantillon de cuivre. Les densités électroniques que nous avons obtenues sont caractéristiques des PILs sur du cuivre solide.

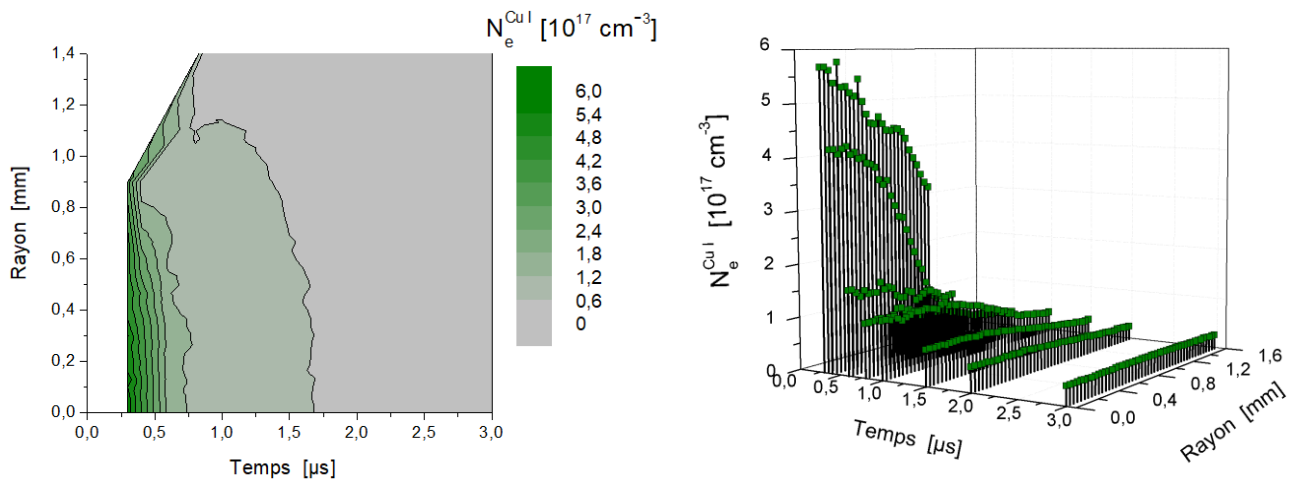


Figure 4-57 : Variations spatio-temporelles de la densité électronique  $N_e^{Cu I}$  issue de la raie 510,5 nm de Cu I ;  
 $X = 0 \text{ mm}$  ;  $Z = 0 \text{ mm}$  ;  $F_{G100} = 0,085 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .

#### 4.9.5 Mesure des paramètres du plasma de cuivre par DT

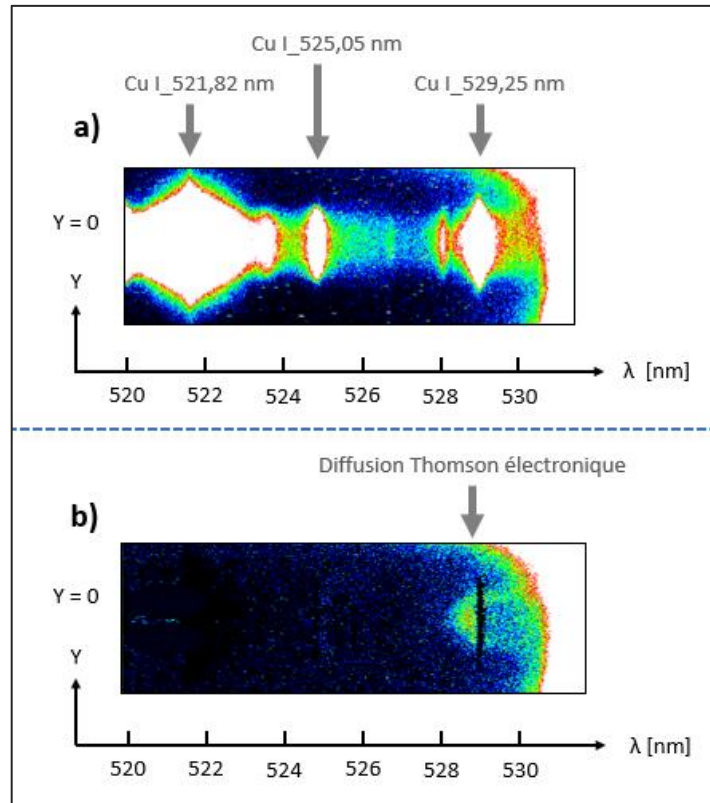
Afin de compléter la caractérisation du plasma de cuivre, nous allons déterminer ses paramètres électroniques ( $N_e^{DT}$  ;  $T_e^{DT}$ ) par diffusion Thomson afin de les comparer aux résultats obtenus par SOE. Le laser sonde (Nd : YAG à 532 nm, avec une durée d'impulsion de 5 ns) est injecté dans le plasma suivant la direction Y avec une fluence de  $F_s = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$  au niveau du point de focalisation.

#### 4.9.5.1 Spectres de diffusion Thomson du plasma de cuivre

Le cuivre neutre est caractérisé par une émission lumineuse relativement intense dans la gamme de longueur d'onde située entre 524 nm et 544 nm qui est malheureusement la plage caractéristique d'apparition des spectres de diffusion Thomson. Il a donc été difficile d'extraire les signaux de diffusion Thomson qui sont de nature faibles en intensité, par comparaison aux intensités des raies métalliques. Nous avons enregistré donc des spectres d'émission du cuivre neutre comme bruit de fond mais la reproductibilité dans l'espace et en intensité des raies d'émission reste très difficile à assurer, notamment à cause de la modification de la surface de la cible pendant l'ablation et des durées d'accumulation des spectres de diffusion Thomson relativement longues (de l'ordre de 8 minutes par spectres). Nous avons finalement choisi de ne travailler que sur un des deux satellites électroniques du spectre de diffusion, et la zone de longueur d'onde inférieure à 532 nm a été choisie car la moins perturbée par des raies de cuivre.

Sur la *Figure 4-58 a)*, nous présentons un spectre de diffusion Thomson électronique avant la soustraction de l'émission du cuivre neutre. Même en exagérant l'affichage de l'intensité des raies, la partie de diffusion électronique pure n'est pas visible. La *Figure 4-58 b)* représente le spectre de diffusion après soustraction des raies d'émission du cuivre. Cependant, la variation trop importante de l'intensité de la raie à 529,25 nm y a laissé une trace qui se manifeste ici par une « faille » sur le satellite électronique (l'intensité de la soustraction du bruit de fond est localement trop importante).

Afin d'éviter des erreurs de mesures trop importantes, nous avons restreint la caractérisation par diffusion laser Thomson à une évaluation spatiale des paramètres électroniques seulement au-delà de 1800 ns après le claquage. La variation spatiale des paramètres électroniques a alors été déterminée en ajustant les spectres expérimentaux avec des spectres simulés de façon tout à fait satisfaisante (cf. *Figure 4-59*) malgré la perturbation d'une partie du spectre (« faille » précédente).



a) Raies de Cu I présentes sur le spectre de diffusion Thomson ;

b) Spectre de diffusion Thomson après soustraction de l'émission des raies de Cu I ;

Figure 4-58 : Spectroscopie du plasma de cuivre ;  $t_{gd} = 1800$  ns ;  $F_{G100} = 0,085$  kJ.cm<sup>-2</sup> ;  $F_S = 0,28$  kJ.cm<sup>-2</sup> ; Réseau de 1200 traits.mm<sup>-1</sup>.

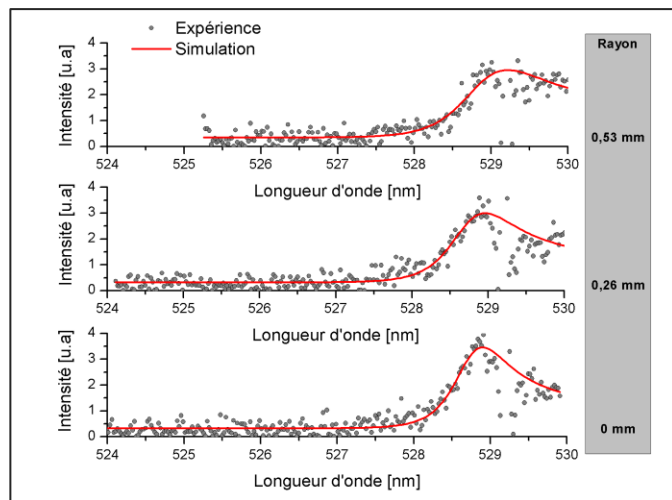


Figure 4-59 : Variations spatiales des spectres de diffusion Thomson ;  $X = 0$  mm ;  $t_{gd} = 1800$  ns ;  $F_{G100} = 0,085$  kJ.cm<sup>-2</sup> ;  $F_S = 0,28$  kJ.cm<sup>-2</sup> ; Réseau de 1200 traits.mm<sup>-1</sup>.

## 4.9.5.2 Mesure des paramètres électroniques par DT

Les répartitions spatiales de la température électronique et de la densité électronique mesurées par DT sont respectivement représentées sur la *Figure 4-60 a)* et la *Figure 4-60 b)* pour le délai de 1800 ns après l'ablation, au centre du plasma. La température électronique est relativement stable autour de 17000 K avec une légère augmentation de l'ordre de 6 % de la valeur moyenne vers la périphérie du plasma. Cette augmentation de la température électronique, qui est dans la marge des erreurs de mesure, pourrait néanmoins refléter un effet de chauffage induit par le laser sonde vers les zones périphériques du plasma.

Le spectre de diffusion (cf. *Figure 4-59*), montre que, spatialement, la variation des paramètres électroniques est visiblement peu importante. Néanmoins, la densité électronique décroît de façon continue du centre vers l'extérieur du plasma : elle passe de  $0,7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  au centre du plasma à  $0,5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  vers la périphérie, avec des incertitudes de l'ordre de 10 %.

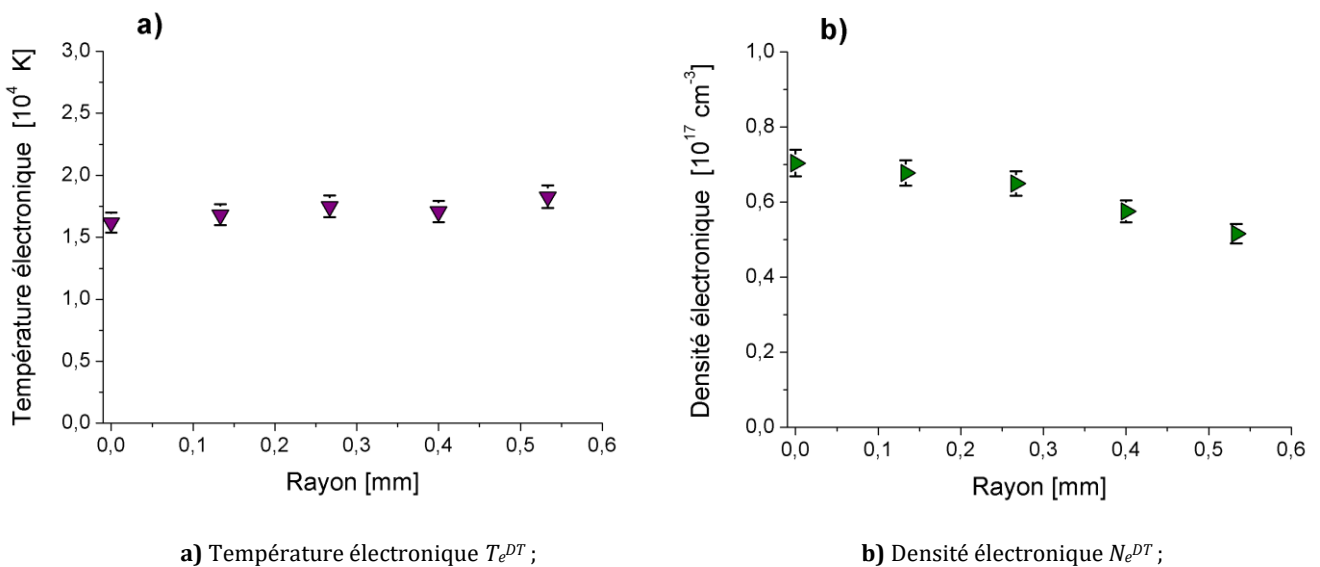


Figure 4-60 : Diagnostic du plasma d'ablation de Cuivre par DT ;  $t_{gd} = 1800 \text{ ns}$  ;  $X = 0 \text{ mm}$  ;  $F_{G100} = 0,085 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ;  $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ; Réseau de 1200 traits.mm<sup>-1</sup>.

## 4.9.6 Disparités entre les mesures par SOE et par DT

Dans le but de comparer les résultats issus des deux techniques spectroscopiques de SOE et de DT pour le plasma de cuivre, nous avons représenté sur la *Figure 4-61* les variations spatio-temporelles de la température d'excitation  $T_{ex}^{Cu I}$  de Cu I déterminée par SOE et la variation spatiale de la température électronique  $T_e^{DT}$  déterminée par DT à un délai de 1800 ns.

Nous avons aussi représenté sur la *Figure 4-62* les variations spatio-temporelles de la densité électronique  $N_e^{Cu I}$  déterminée par l'élargissement Stark de la raie 510,5 nm de Cu I et la densité électronique  $N_e^{DT}$  obtenue par la diffusion Thomson à un délai de 1800 ns.

Même s'il n'existe qu'un seul délai de comparaison (1800 ns), les températures d'excitation de Cu I et les densités électroniques déterminées par des méthodes différentes, sont comparables. Ce résultat nous laisse penser qu'il existe un équilibre thermique entre les atomes de cuivre et les électrons dans le plasma.

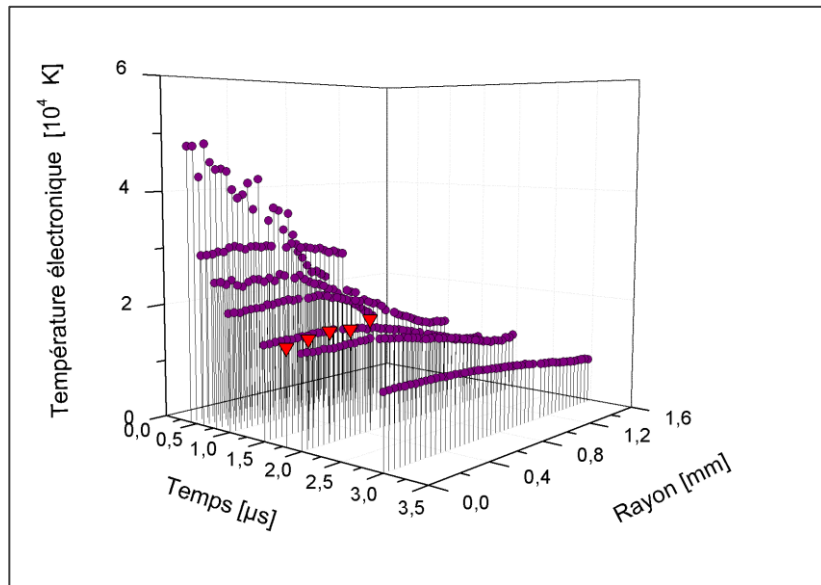


Figure 4-61 : Variations spatio-temporelles des températures du plasma de cuivre déterminées par SOE et par DT ;  
 (●)  $T_{ex}^{Cu I}$  ; (▼)  $T_e^{DT}$  ;  $X = 0$  mm ;  $F_{G100} = 0,085$  kJ.cm<sup>-2</sup> ;  $F_S = 0,28$  kJ.cm<sup>-2</sup>.

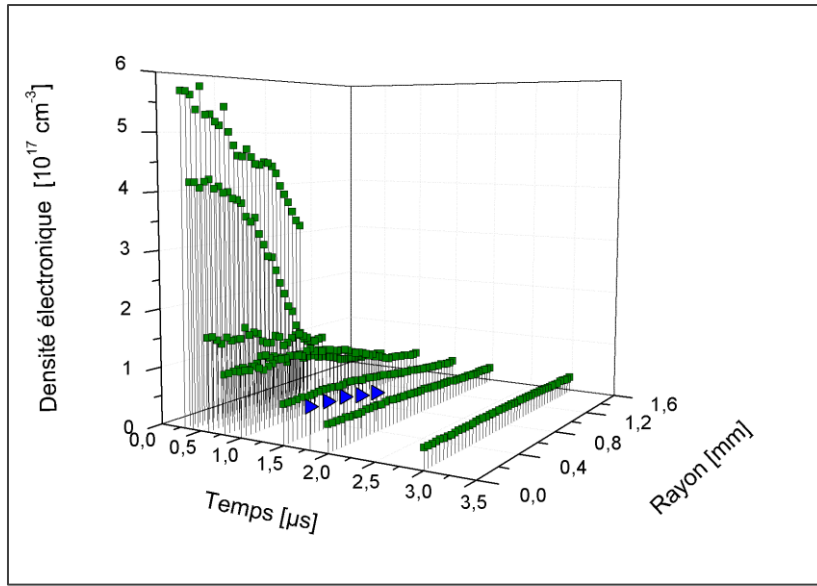


Figure 4-62 : Variations spatio-temporelles des densités électroniques du plasma de cuivre déterminées par SOE et par DT ; (■)  $N_e^{CuI}$  ; (▶)  $N_e^{DT}$  ;  $X = 0$  mm ;  $F_{G100} = 0,085$  kJ.cm<sup>-2</sup> ;  $F_S = 0,28$  kJ.cm<sup>-2</sup>.

#### 4.9.7 Critères de vérification de l'ETL

Les valeurs de températures électroniques et de densités électroniques déterminées par DT ne concernent que le délai de 1800 ns. Néanmoins, au moins pour ces valeurs, le critère de McWhirter est vérifié dans le plasma avec une densité électronique minimale de McWhirter 5 fois inférieure aux densités électroniques mesurées. En revanche, comme nous l'avons évoqué dans le cas de l'argon, la nature transitoire du plasma de cuivre exige les critères supplémentaires de stationnarité et d'homogénéité pour valider les hypothèses d'existence d'ETL.

L'homogénéité du plasma est garantie d'une part par les faibles variations spatiales des paramètres mesurés et d'autre part par les faibles longueurs de diffusion qui sont de l'ordre de  $10^{-13}$  m (valeur calculée selon l'équation 1.38) pour le cuivre neutre entre le centre du plasma et sa périphérie à un délai de 400 ns.

Le critère de stationnarité a été évalué en calculant les temps de relaxation de la raie 327,39 nm de Cu I qui correspond à une transition entre un premier état excité et le niveau fondamental de Cu I. Le temps de relaxation, dont l'évolution temporelle au centre du plasma est représentée sur la Figure 4-63, avoisine les 0,28 ns à un délai de 400 ns et atteint 6 ns à un délai de 3 µs. De façon générale, le temps de relaxation est toujours très négligeable devant la durée de vie du plasma.

Nous avons utilisé ces temps de relaxation et la température d'excitation de Cu I, ici assimilée à la température électronique, pour calculer les taux de variations temporelles de la température (Figure 4-64 a)) et de la densité électronique (Figure 4-64 b)) devant le temps de relaxation de la raie 327,39 nm de Cu I. Le critère de stationnarité (cf. équation 1.35) est largement vérifié par le cuivre neutre. En effet, les taux de variations des paramètres du plasma sont à trois ordres de grandeur inférieurs à l'unité. Nous en concluons donc que le plasma de cuivre est à l'ETL au moins à un délai de 1800 ns.

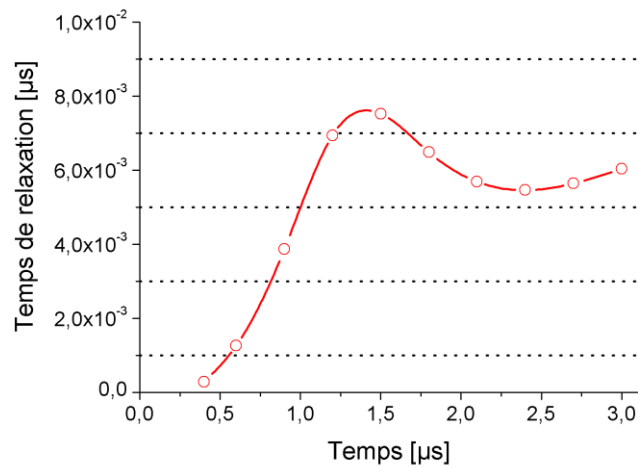
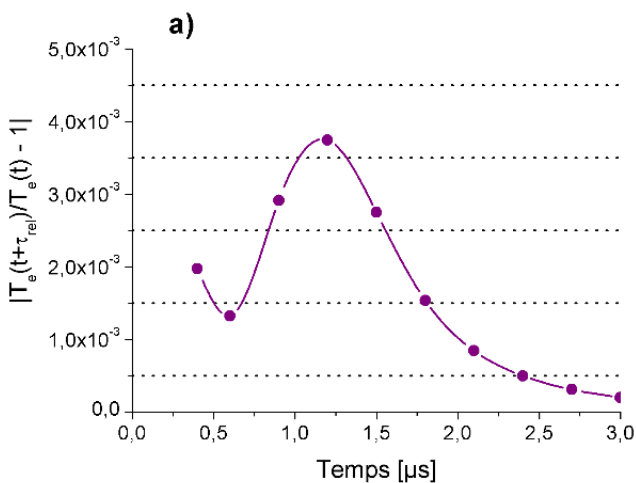
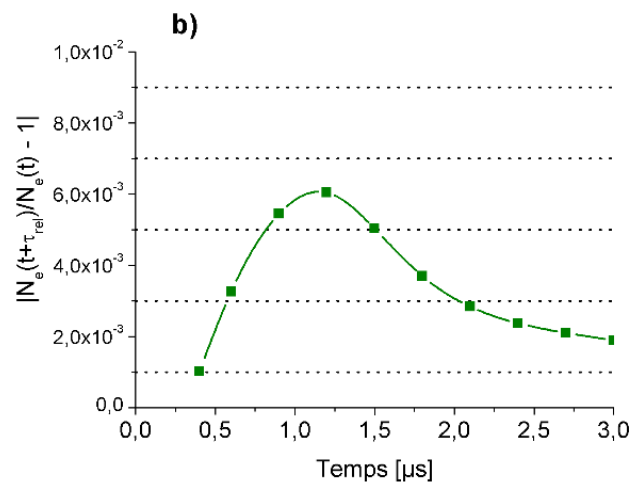


Figure 4-63 : Évolution temporelle du temps de relaxation  $\tau_{rel}$  au centre du plasma pour la raie 327,39 nm de Cu I ;  $F_{G100} = 0,085 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ;  $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .



a) Température électronique ;



b) Densité électronique ;

Figure 4-64 : Évolution des taux de variations temporelles des paramètres du plasma par rapport aux temps de relaxation au centre du plasma pour la raie 327,39 nm de Cu I ;  $F_{G100} = 0,085 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ;  $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .

#### 4.9.8 Conclusion

Le plasma de cuivre a été diagnostiqué par SOE et par DT afin de pouvoir comparer les mesures des paramètres du plasma. L'utilisation des raies de Cu I a permis de mesurer à la fois la température d'excitation du cuivre neutre et la densité électronique, notamment à partir de l'élargissement Stark de la raie 510,5 nm de Cu I. Par contre, la caractérisation par diffusion Thomson a été restreinte par la présence de plusieurs raies intenses de Cu I sur le spectre de diffusion. Les mesures par DT ont donc été réalisées uniquement à un délai de 1800 ns.

La température d'excitation de Cu I obtenue par SOE et la température électronique mesurée par DT sont assez comparables (environ 17000 K). C'est aussi le cas pour les densités électroniques issues respectivement de la SOE et de la DT (environ  $0,7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ). Les critères de McWhirter, d'homogénéité et de stationnarité du plasma de cuivre, nous ont permis de confirmer l'existence d'un ETL au sein du plasma de cuivre, au moins au délai de 1800 ns.

Il pourrait être intéressant d'étudier le plasma de cuivre par diffusion Thomson à d'autres longueurs d'onde, en cherchant à éviter la présence des raies intenses de cuivre sur le spectre de diffusion, mais tout en gardant le caractère collectif de la diffusion. Cela permettrait d'avoir une plus large gamme de variation spatio-temporelle des paramètres électroniques, et enfin d'avoir la possibilité de confirmer ou infirmer l'hypothèse d'ETL du plasma de cuivre dans les premiers instants de l'étincelle.

#### 4.10 Conclusion sur l'étude des PILs

La diffusion de Thomson a été utilisée pour mesurer la température et la densité des électrons dans des plasmas générés par laser (claquage, ablation). C'est une technique de mesure directe et résolue spatialement, qui, malgré des difficultés de mise en œuvre, notamment liées à la synchronisation spatio-temporelle du laser sonde avec le plasma, montre toute son efficacité pour caractériser le milieu, même transitoire. Bien que la technique soit généralement considérée comme non perturbatrice, des travaux récents indiquent que les effets de chauffage du plasma par l'impulsion sonde doivent être pris en compte, notamment.

Mais pour garantir des performances adéquates, il est nécessaire :

- D'utiliser un niveau élevé de rayonnement incident tout en évitant les processus tels que la photo-ionisation et la perturbation du plasma en raison des potentielles fortes densités de puissance dans le volume d'observation.
- De minimiser toutes perturbations lumineuses qui pourraient masquer le signal de diffusion de Thomson, voire endommager le détecteur.
- De limiter irrégularités les au niveau des éléments optiques (miroirs, lentilles), que ce soit en amont du point de claquage du plasma (notamment pour assurer une bonne reproductibilité spatiale) qu'en aval (afin de récupérer le maximum de photons en limitant autant que possible les pertes optiques).



Associée à des méthodes classiques de spectroscopie optique d'émission, utilisées notamment dans les méthodes de LIBS, la DT permet de valider/invalides les hypothèses d'ETL sous-jacentes, et de mieux optimiser les performances des mesures par LIBS dans des gaz et/ou sur des échantillons métalliques, en trouvant les conditions expérimentales les plus appropriées.

# Conclusion générale et Perspectives

## 5 Conclusion générale

### 5.1 Synthèse

Le domaine de la simulation ne cesse de se développer et occupe aujourd'hui une place importante dans l'étude du comportement des milieux plasmagènes. Cependant, la validation des modèles numériques passe toujours par des mesures expérimentales. Dans le cas de la simulation d'allumage de matières pulvérulentes, l'absence de données expérimentales sur le plasma d'allumage conduit souvent à une simplification des modèles numériques en utilisant un formalisme de type « point chaud », généralement défini par une température unique de la source d'allumage, ce qui n'est pas réaliste. Aussi, la distribution spatiale des espèces excitées conditionne les processus d'allumage de matières pulvérulentes.

Des données réalistes de la répartition spatio-temporelle des paramètres du plasma de décharge entre deux électrodes de tungstène, utilisé pour allumer des matières pulvérulentes ont été déterminées par Spectroscopie Optique d'Émission (SOE). L'hypothèse d'équilibre d'excitation a d'abord été supposée pour déterminer les températures d'excitation des vapeurs de tungstène neutre. Les températures les plus importantes ont été mesurées dans la colonne de décharge, atteignant 10000 K, alors que les zones anodiques et cathodiques ont des températures maximales de 4800 K et de 4300 K, respectivement, en raison d'un fort refroidissement par le rayonnement des espèces métalliques présentes dans le plasma.

Étant donné que le plasma de décharge est de nature stationnaire et homogène, nous avons évalué son état d'Équilibre Thermodynamique Local (ETL) par le critère de McWhirter, qui n'a en l'occurrence été vérifié que dans la colonne de décharge. Cependant, le moyen le plus direct pour vérifier l'existence d'ETL serait de comparer les valeurs obtenues à des mesures locales de  $T_e$  et  $N_e$  en s'affranchissant des hypothèses intrinsèques aux méthodes de SOE. Malheureusement, avec notre dispositif expérimental, nous n'avons pas pu réaliser ces mesures par la méthode de Diffusion Thomson envisagée, à la fois en raison des problèmes de reproductibilité spatiale de la décharge, mais aussi de l'existence de particules métalliques dans le milieu.

Des mesures complémentaires sur les températures de flammes pendant la combustion d'un nuage de poudre d'aluminium, allumé par la décharge électrique étudiée, ont également été effectuées. C'est pour la première fois, à notre connaissance, qu'une telle étude complète, de l'étincelle à la flamme de combustion, a été réalisée. Elle fournit un ensemble de données cohérentes et réalistes de températures et de densités électroniques pouvant notamment être utilisé comme données d'entrée de simulation du transfert d'énergie thermique ou chimique qui initient les réactions chimiques de combustion. Notons que la méthode de diagnostic basée sur les spectres moléculaires de AlO, a maintenant été implantée en routine au laboratoire PRISME, et a permis notamment à M. Millogo [193] d'obtenir des résultats originaux et encourageants.

## Conclusion générale et Perspectives

Une seconde partie de notre étude s'est intéressée à des plasmas d'allumage générés par claquage laser (PIL), couramment utilisés pour les applications d'allumage (poudres, nuages de poussières, mélanges combustibles) ou à des fins d'analyses (étincelage, spectroscopie de plasma induit par laser (LIBS)). Ce sont des milieux plasmagènes transitoires plus stables dans leur expansion et leur forme que l'étincelle électrique éclatant entre deux pointes. Ce meilleur contrôle permet, d'une part, de générer des plasmas transitoires bien reproductibles spatialement et temporellement, et d'autre part, de disposer de forts gradients de températures et de densités sur un même dispositif expérimental. Ce type de plasma a ainsi pu être étudié par SOE et par DT afin de statuer sur les conditions d'existence d'ETL, et ainsi a fortiori juger de la validité des méthodes appliquées notamment en LIBS.

Nous avons donc utilisé la SOE pour déterminer les températures d'excitation des particules lourdes par la méthode du graphe de Boltzmann sous l'hypothèse d'existence de l'équilibre d'excitation, et la Diffusion Thomson (DT) pour déterminer la température électronique et la densité électronique sans aucune condition d'équilibre thermodynamique, pour un plasma de claquage dans l'argon et un plasma d'ablation sur du cuivre. Les densités électroniques ont pu également être mesurées à partir de l'élargissement Stark des raies d'émission. La comparaison des différents résultats a permis de donner quelques conclusions sur l'état d'équilibre des plasmas étudiés.

- Pour le plasma d'argon :

Il existe un déséquilibre thermique avec une température électronique plus élevée dont la valeur maximale est de 55000 K alors que les températures d'excitation des argons neutres et une fois ionisés ont des valeurs maximales de 17000 K et 30000 K, respectivement.

Vers un délai d'environ 300 ns après la formation du plasma, la densité électronique mesurée par DT est proche de la densité électronique mesurée avec l'élargissement Stark de la raie 480,6 nm d'Ar II (environ  $4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ), alors que la densité électronique mesurée avec l'élargissement Stark de la raie 696,5 nm d'Ar I est, au même moment, deux fois plus faible. Outre de potentielles erreurs expérimentales liées au faible rapport signal/bruit de l'intensité de la raie 696,5 nm d'Ar I, nous avons supposé que cette sous-évaluation de la densité électronique était due à une non-linéarité de l'effet Stark à haute densité électronique.

Aussi, nous avons vérifié et confirmé la linéarité de l'effet Stark des deux raies 696,5 nm d'Ar I et 480,6 nm d'Ar II, en fonction de la densité électronique, en combinant la SOE et la DT (deux méthodes indépendantes) pour déterminer respectivement leurs paramètres Stark et les densités électroniques correspondantes. Cette étude nous a aussi permis de fournir des données spectroscopiques d'élargissement et de déplacement Stark de ces deux raies d'argon, pouvant être utilisées pour diagnostiquer des plasmas d'argon sur une large gamme de densité électronique. Cette vérification nous a finalement permis de conclure que l'élargissement Stark de la raie 696,5 nm d'Ar I était plutôt sous-estimé à cause d'un faible rapport signal/bruit de l'intensité de cette raie, dans les premiers instants après la formation du plasma, où le taux d'ionisation semble élevé.

## Conclusion générale et Perspectives

L'homogénéité du plasma d'argon a été vérifiée mais sa stationnarité est plus difficile à obtenir, notamment à cause des longs temps de relaxation de certaines raies d'argon devant la durée de vie du plasma. Le plasma d'argon n'est pas à l'ETL et cet écart à l'ETL doit être pris en compte lors des diagnostics spectroscopiques sous argon.

Même si le caractère intrusif du laser sonde a été montré par un chauffage des électrons libres, nous n'avons pas pu quantifier l'élévation de température électronique induite par le laser sonde. La quantification de ce chauffage reste donc un point d'amélioration de la précision du sondage par diffusion Thomson.

- Pour le plasma de cuivre :

La caractérisation du plasma de cuivre par SOE a reposé sur la mesure des raies de Cu I en déterminant leurs températures d'excitation par la méthode du graphe de Boltzmann et la densité électronique par l'élargissement Stark de la raie 510,5 nm de Cu I. Cependant, le sondage du plasma par DT a été rendu particulièrement difficile par la présence de raies intenses de cuivre sur le spectre de diffusion. La comparaison des résultats n'a alors pu être faite qu'à un seul délai de 1800 ns, temps choisi comme un bon compromis entre l'intensité du signal de DT et la relative faiblesse des raies d'émission de Cu I. Les valeurs spatiales des températures d'excitation sont similaires aux températures électroniques issues de la DT, soit environ 17000 K. Les différentes densités électroniques convergent également vers des valeurs similaires (environ  $0,7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ). De plus, les critères d'homogénéité et de stationnarité du plasma ont bien été validés. Le plasma de cuivre semble donc à l'ETL, au moins à un délai de 1800 ns. Ce résultat est assez encourageant pour le diagnostic par LIBS appliqué à des matériaux contenant du cuivre en forte concentration atomique.

Cependant, pour avoir une plus large gamme de variation spatio-temporelle des paramètres électroniques du plasma de cuivre, il serait intéressant de faire un diagnostic du plasma par diffusion Thomson à une autre longueur d'onde afin d'éviter la présence des raies intenses de cuivre sur le spectre de diffusion, et enfin d'avoir ainsi la possibilité de confirmer l'ETL du plasma de cuivre dans sa globalité.

### 5.2 Influence des temps de relaxations sur l'ETL

La validité des hypothèses d'existence d'ETL nécessite la vérification des critères d'homogénéité et de stationnarité, pour les plasmas transitoires. L'étude des différents types de plasma dans ce manuscrit (plasma de décharge, de claquage et d'ablation laser), nous a permis de remarquer que les gradients temporels des paramètres du plasma étaient en général plus forts que leurs gradients spatiaux. La rupture de l'ETL semble donc davantage liée au critère de stationnarité des plasmas transitoires.

De ce fait, nous avons calculé et comparé les temps de relaxation de plusieurs espèces chimiques (gazeuses et métalliques à température ambiante) dans un plasma

modérément ionisé (ici à 10 % par exemple). Ces différentes espèces chimiques, ainsi que certaines des constantes spectroscopiques utilisées dans ce calcul (cf. *équation 1.36*), sont présentées dans le *Tableau 15* [2]. Il s'agit notamment des longueurs d'onde, des probabilités des transitions  $A_{21}$  et des écarts d'énergie  $\Delta E_{21}$  entre le premier état excité et le niveau fondamental. Les temps de relaxation ainsi calculés sont représentés sur la *Figure 5-1* en fonction de la température globale du plasma, pour une densité électronique semblable à celle du plasma d'argon (cf. paragraphe 4.8.4.2).

Étant donné que les faibles temps de relaxation favorisent théoriquement la stationnarité (cf. *équation 1.35*) et donc l'existence de l'ETL, nous en déduisons que les plasmas « métalliques » seraient les plus favorables à l'ETL, ce qui conforte aussi les hypothèses faites pour les plasmas de tungstène (colonne de décharge) et de cuivre étudiés dans ce manuscrit. De plus, nous avons montré également dans ce manuscrit que le plasma d'argon était hors d'ETL et sur la *Figure 5-1*, le temps de relaxation d'Ar I est le plus élevé. Pour compléter cette analyse, nous avons étudié un plasma de claquage dans du CO<sub>2</sub> à pression atmosphérique et mesuré ses paramètres électroniques par DT. Nous avons aussi évalué le critère de McWhirter dans ce plasma pour l'oxygène O I et le carbone C I dont les densités électroniques respectives de vérification de ce critère sont  $N_e^{O I}$  et  $N_e^{C I}$ . Les résultats sont présentés sur la *Figure 5-2* où nous pouvons remarquer que ce critère d'ETL est très rapidement rompu par l'oxygène puis par le carbone, juste après la formation du plasma. De plus, le carbone semble plus favorable à l'ETL que l'oxygène, comme c'est préalablement indiqué par la *Figure 5-1*.

La validité de l'ETL pour les autres espèces telles que Al I, Fe I, Mg I et N I a déjà été étudiée par A.F. Sougueh [17], dans des plasmas induits par laser où Al I, Fe I et Mg I vérifient le critère de McWhirter contrairement à N I.

Les plasmas « métalliques » semblent donc plus favorables à l'ETL que les plasmas « gazeux » car les écarts d'énergie entre les états excités des espèces métalliques sont généralement plus faibles par rapport aux espèces gazeuses (cf. *Tableau 15*). Cela facilite davantage la répartition de l'énergie et permet un retour à l'équilibre plus rapide chez les espèces métalliques.

Le critère de stationnarité semble donc un moyen pratique pour comparer la potentielle validité de l'ETL en fonction des espèces présentes dans le plasma.

## Conclusion générale et Perspectives

Espèce	Longueur d'onde [nm]	$A_{21}$ [ $10^6 \text{ s}^{-1}$ ]	$\Delta E_{21}$ [eV]
C I	165,69	108,50	7,48
N I	120,07	397,40	10,32
O I	130,21	314,50	9,52
Mg I	285,21	508,60	4,34
Al I	394,40	51,05	3,14
Ar I	106,66	126,20	11,62
Fe I	385,99	9,69	3,21
Cu I	327,39	136,10	3,78
W I	498,25	0,29	2,28

Tableau 15 : Espèces chimiques et données spectroscopiques des transitions radiatives.

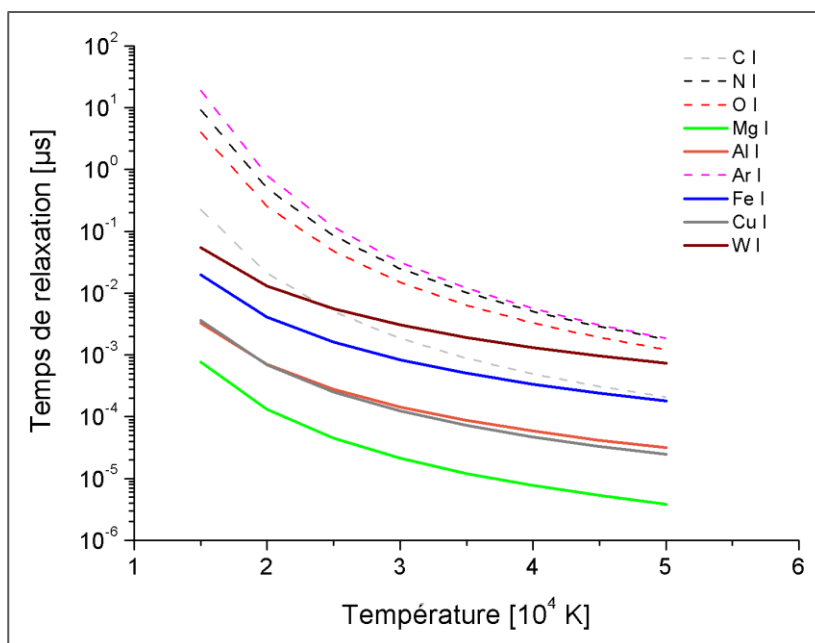


Figure 5-1 : Évolution du temps de relaxation de plusieurs espèces chimiques en fonction de la température.

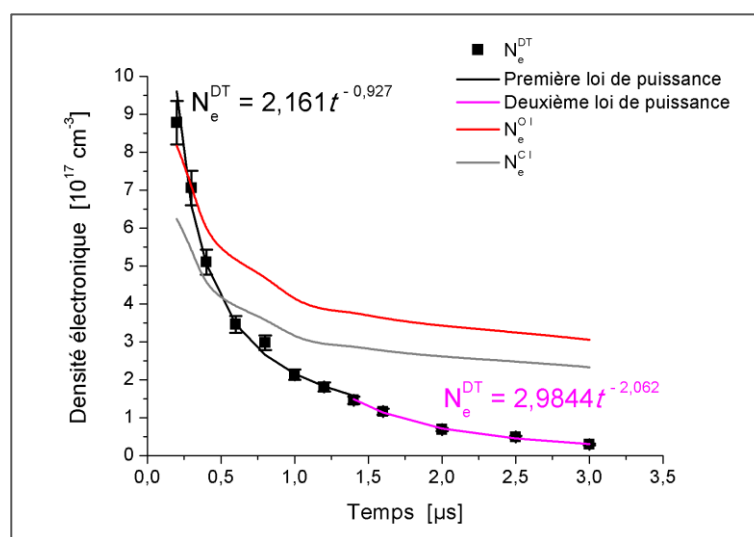


Figure 5-2 : Variations temporelles de la densité électronique du plasma de  $\text{CO}_2$  mesurée par diffusion Thomson ;  $N_e^{DT}$  en [ $10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ] et  $t$  en [ $\mu\text{s}$ ] ;  $X = 0 \text{ mm}$  ;  $r = 0 \text{ mm}$  ;  $F_G = 4,05 \text{ kJ.cm}^{-2}$  ;  $F_S = 0,28 \text{ kJ.cm}^{-2}$ .

## 6 Perspectives

Nous allons donner ci-dessous quelques-unes des perspectives envisagées. Il faut noter que certaines sont déjà en cours de réalisation ou d'analyse de faisabilité pour prolonger ce travail, et exploiter le dispositif expérimental performant qui a pu être développé au laboratoire.

### 6.1 Validation des méthodes spectroscopiques

Nous avons montré à travers ce manuscrit, que la DT était une méthode utile pour valider l'emploi de méthodes de SOE sous hypothèse d'ETL, pour sonder le plasma. A cet égard, la DT pourrait également être utilisée pour vérifier la validité d'autres méthodes de diagnostic de plasma, couramment utilisées en LIBS par exemple. Il serait ainsi intéressant de comparer les distributions de  $N_e$  et  $T_e$  obtenues au centre du plasma, avec les valeurs déterminées en ajustant les spectres d'émission expérimentaux (parfois auto-absorbés, toujours intégrés spatialement et temporellement, et enregistrés parfois dans des conditions différentes) avec des spectres théoriques issus du modèle « collisionnel-radiatif » [194], ou calculés sous ETL à partir d'équations de transferts de rayonnement.

Ainsi le code LTESpec développé par J. Hermann [113], [195]–[197] permet la simulation des spectres émis par un plasma multi-élémentaire, et prend en compte l'auto-absorption à travers la considération d'un plasma composé d'un cœur chaud et d'une



périphérie froide. L'emploi simultané de ce logiciel et de la DT, devrait permettre d'évaluer et d'optimiser les performances des mesures LIBS dans des gaz et/ou sur des échantillons métalliques, en trouvant les conditions expérimentales les plus appropriées, permettant de générer un plasma approprié à la fois pour l'acquisition et pour un dépouillement simple et précis du spectre d'émission.

### 6.2 Évaluation du déséquilibre thermique : STR

L'exploitation de la DT peut aussi être plus poussée en utilisant la partie ionique du spectre de diffusion (cf. paragraphe 2.2.3.1, page 44). L'intérêt de cette partie ionique est qu'elle peut permettre de déterminer la température des ions, pour pouvoir la comparer directement avec celle des électrons. En effet, l'utilisation des techniques de spectroscopie optique d'émission et de diffusion laser Thomson nous ont permis de déceler des écarts de température importants entre les particules excités et les électrons. Cependant, les températures d'excitation mesurées ne représentent pas la température cinétique des particules lourdes, et la difficulté de la comparaison des températures d'excitation  $T_{ex}$  des atomes et des ions, avec les températures électroniques  $T_e$ , provient du fait que physiquement elles représentent deux entités totalement différentes [17]. La connaissance précise de la température ionique permettrait d'évaluer les écarts de températures cinétiques entre les espèces lourdes (ions) et les espèces légères (électrons), et donc de mieux quantifier les écarts à l'ETL.

La partie ionique de la diffusion Thomson a déjà été utilisée par Dzierżęga et al. [198] avec un plasma d'hélium à pression atmosphérique produit par un laser Nd : YAG à 532 nm. La *Figure 6-1* montre les écarts de températures entre les électrons et les particules lourdes, pouvant aller jusqu'à 48000 K. Cependant, lorsqu'il s'agit d'atomes lourds comme l'argon ou le cuivre, il est presque impossible de séparer spectralement la diffusion Thomson ionique et la diffusion Rayleigh, car plus la particule est lourde, plus la diffusion Thomson est faible.

Une approche possible, pour réduire l'influence de la diffusion Rayleigh, qui présente une dépendance en  $\lambda^{-4}$ , pourrait être de travailler dans l'infra-rouge. Mais nous serions alors confrontés aux difficultés d'alignement et de manipulation, mais également de détection (prix des détecteurs, faible sensibilité).

Une autre approche est de mettre à profit le fait que la largeur du spectre Rayleigh, liée au mouvement des atomes, plus lourds et moins mobiles que les électrons, est plus faible que celle du spectre de diffusion Thomson. C'est dans ce cadre que nous avons plutôt souhaité évaluer la faisabilité d'exploiter la partie ionique du spectre de diffusion Thomson, en mettant en place un Spectromètre à Trois Réseaux (STR), ou Triple Grating System en anglais, afin d'éliminer le signal de diffusion Rayleigh recouvrant une partie de la diffusion Thomson ionique. L'objectif était alors de pouvoir comparer les températures ioniques avec les températures d'excitation.

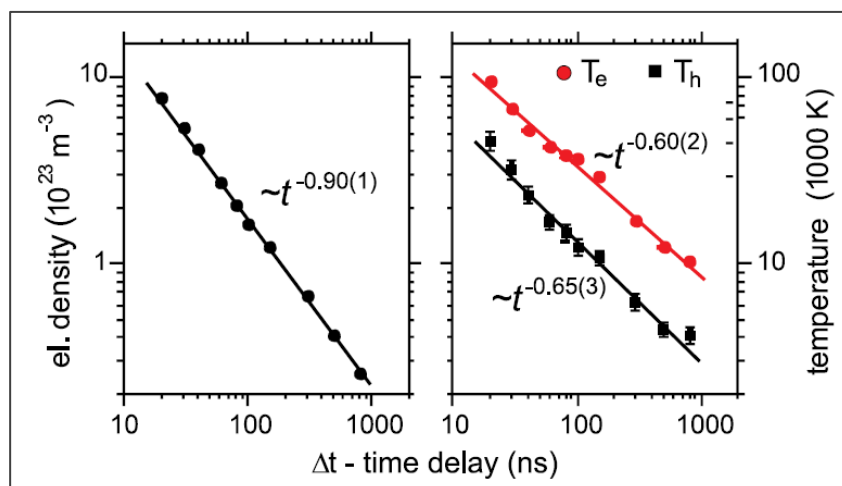


Figure 6-1 : Évolution temporelle de la densité électronique, de la température électronique et de la température de l'hélium au centre du plasma, extraite de [198].

### 6.2.1 Principe du Spectromètre à Trois Réseaux (STR)

Le principe du STR consiste à éliminer physiquement le signal de diffusion Rayleigh par un « masque » de taille bien définie placé dans le plan de focalisation de la diffusion Rayleigh. Il s'agit en pratique d'une séparation spatiale des différentes lumières du spectre de diffusion en fonction de leurs longueurs d'onde. Dans le cas d'une diffusion Thomson incohérente, dont la forme du spectre est une gaussienne, le STR a été utilisé par Sande et Mullen [199] et par Carbone et al. [200] pour supprimer le signal de diffusion Rayleigh dans des plasmas non thermiques.

Le dispositif expérimental du STR est représenté sur la *Figure 6-2* : nous avons ajouté deux réseaux de  $1200 \text{ traits.mm}^{-1}$  au dispositif expérimental décrit à la section 4.6. Cependant, nous avons gardé le chemin optique classique de caractérisation par SOE représenté par les lignes en pointillé. Les premiers essais sont réalisés dans l'argon et dans l'azote à différentes pressions de 0,5 à 1,5 bar afin de faire varier les caractéristiques des plasmas sondés.

## Conclusion générale et Perspectives

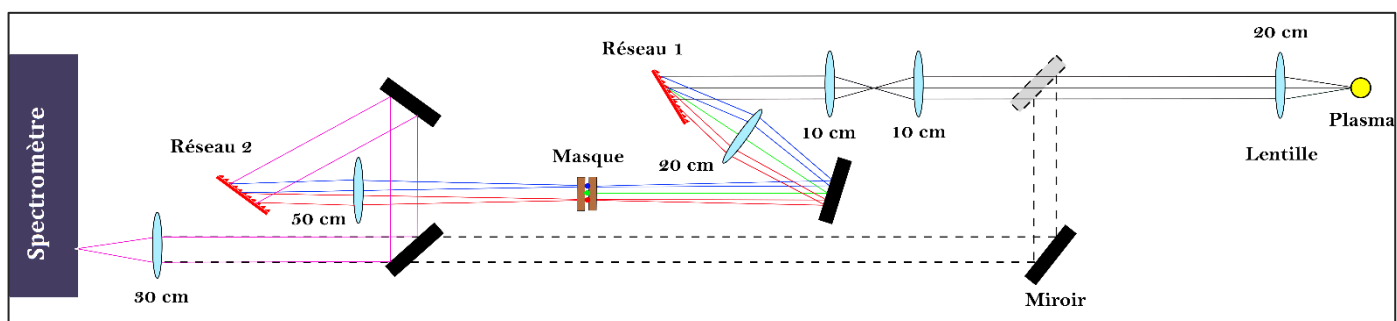


Figure 6-2 : Dispositif expérimental du STR.

La taille du masque  $\Delta\lambda_{masque}$  dépend de l'angle d'incidence entre la normale au Réseau 1 et le faisceau incident (cf. Figure 6-3). La relation des réseaux est donnée par la formule suivante :

$$\sin(\alpha') + \sin(\beta') = kn\lambda \tag{6.1}$$

où  $k$  est l'ordre de diffraction ;  $n$  est le nombre de traits par millimètre du réseau et  $\lambda$  est la longueur d'onde du faisceau diffracté.

$$\tan(\gamma') = \frac{X}{f} \approx \gamma' = \pi - cste - \beta' \tag{6.2}$$

où  $f$  est la distance focale de la lentille ;  $cste$  est l'angle complémentaire de  $\beta'+\gamma'$ .

La Dispersion Spatiale ( $DS$ ) est donnée par la relation suivante :

$$DS = \frac{dX}{d\lambda} = \frac{dX}{d\beta'} \times \frac{d\beta'}{d\lambda} = -\frac{fkn}{\cos(\beta')} \quad [\text{mm} \cdot \text{nm}^{-1}] \tag{6.3}$$

La gamme de longueur d'onde du signal Rayleigh à supprimer se situe à  $\lambda = 532,14 \text{ nm} \pm 0,03 \text{ nm}$ . Puisque  $X(\lambda) = DS \times \lambda$ , la taille du masque  $\Delta\lambda_{masque}$  est donnée par la relation suivante :

$$\Delta\lambda_{masque} = X(532,17) - X(532,11) = 209 \text{ } \mu\text{m} \tag{6.4}$$

Après avoir soustrait le signal Rayleigh, le faisceau diffusé est diffracté à nouveau sur le Réseau 2 de façon opposée par rapport au Réseau 1, c'est à dire en inversant les angles  $\alpha'$  et  $\beta'$  qui deviennent respectivement  $\beta'$  et  $\alpha'$  sur le Réseau 2.

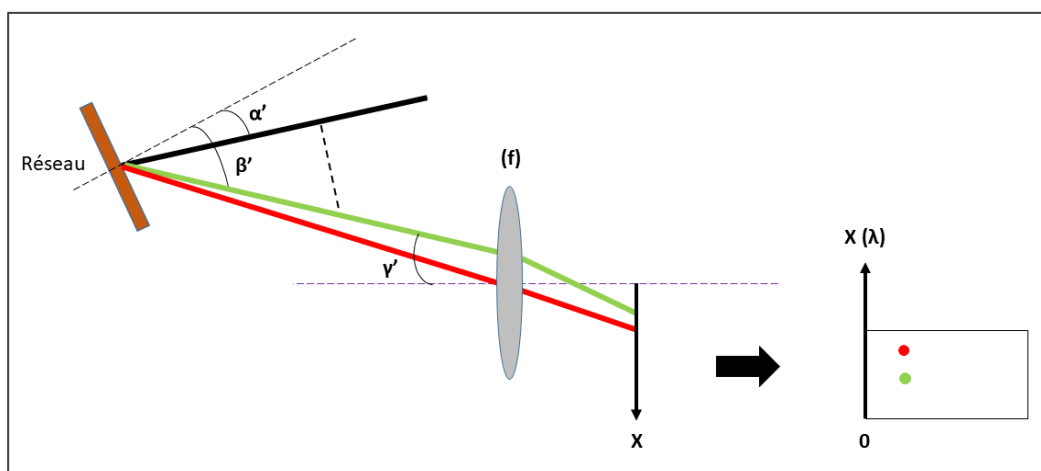
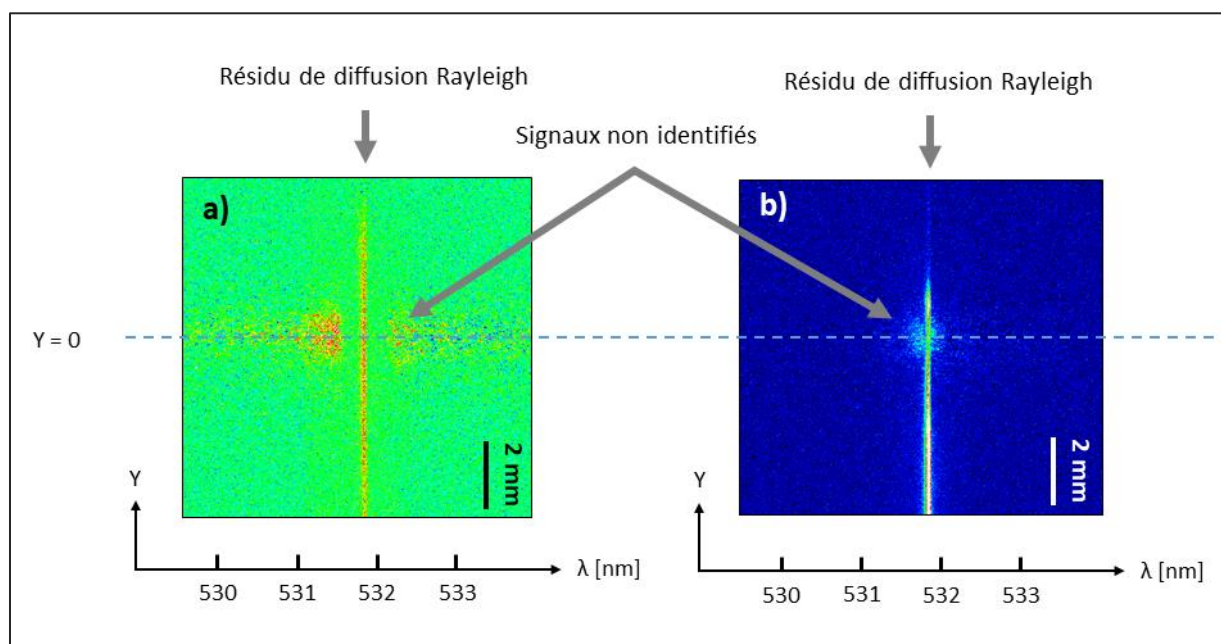


Figure 6-3 : Angles de dispersion des réseaux et zone de focalisation sur le masque ; la direction  $X$  est l'axe dispersion de la lumière focalisée et le masque est positionné dans le plan de l'axe  $X$ .

### 6.2.2 Résultats et conclusions préliminaires

Nous avons mis en place le STR et avons tenté de récolter un signal de diffusion exploitable à la fois dans l'argon et dans l'azote à différentes pressions de 0,5 à 1,5 bar. Un exemple de résultat est donné sur la *Figure 6-4*, où sont représentés les signaux typiques de diffusion obtenus dans l'argon et dans l'azote, après avoir soustrait la partie Rayleigh. Comme nous pouvons le constater ici, il existe un signal Rayleigh résiduel qui provient probablement de la diffraction du faisceau lumineux sur les bords du masque. Par ailleurs, les « signaux non identifiés » ne sont pas symétriques par rapport à la longueur d'onde à 532 nm et ne représentent pas le signal de diffusion Thomson ionique.

## Conclusion générale et Perspectives



**a)** Argon ; pression = 1,5 bar ; Réseau de 2400 traits.mm<sup>-1</sup> ;

**b)** Azote ; pression = 1 bar ; Réseau de 1200 traits.mm<sup>-1</sup> ;

Figure 6-4 : Premiers spectres de diffusion obtenus par DT avec le STR ;  $t_{gd} = 200$  ns ;  $F_G = 44,9$  kJ.cm<sup>-2</sup> ;  $F_S = 0,28$  kJ.cm<sup>-2</sup>.

Malheureusement, le signal collecté dans ces expériences préliminaires, reste non identifié et donc inexploitable. Quelques raisons peuvent être avancées :

- La largeur spectrale du laser sonde, d'environ 70 pm, est beaucoup trop large et recouvre totalement la partie centrale du spectre de diffusion. Par ailleurs, la dispersion du signal de diffusion empêche une focalisation nette dans le plan du masque et il en résulte la perte d'une grande partie du signal de diffusion ionique Thomson.
- Le signal de diffusion subit une atténuation trop importante après le passage à travers les différents composants du banc optique.
- La taille du plasma est trop petite. En effet, pour accentuer la séparation des signaux de diffusion Thomson ionique et Rayleigh, il faut observer le plasma dans les premières nanosecondes après sa création. Cependant, dans les tous premiers instants, la taille du plasma n'est que de quelques dixièmes de millimètres et la superposition spatiale ou l'intersection entre le faisceau du laser sonde et le plasma lui-même est très difficile à réaliser.
- La résolution de la caméra qui est de 512×512 pixel<sup>2</sup> au pas de 19 μm, est trop faible et l'utilisation d'une matrice plus étendue augmenterait les chances d'observer la diffusion du plasma.

Les trois points clés pour augmenter les chances d'observation d'un signal de diffusion propre est d'utiliser un laser sonde avec une largeur spectrale fine (inférieure à

50 pm), d'utiliser une caméra avec une grande taille de matrice (par exemple  $1024 \times 1024$  pixel<sup>2</sup>) et enfin de commencer par des essais dans des gaz légers tels que l'hydrogène.

Il faut noter que des techniques basées sur l'utilisation de filtre coupe-bande, ont également été proposées [201], [202]. Récemment, B. Vincent et al. [203] ont proposé d'atténuer significativement le rayonnement à 532 nm, composé de la lumière directe du laser sonde et de sa diffusion Rayleigh par les atomes et les molécules, en utilisant un filtre accordable à réseau de Bragg en volume (Volume Bragg Grating (VBG) notch filter) de FWHM de seulement 0,2 nm et de densité optique maximale de 4. Un réseau de Bragg en volume est un réseau de diffraction réalisé par une modulation périodique de l'indice de réfraction au travers du volume d'un matériau photosensible. Cette modulation peut être orientée afin de transmettre ou de réfléchir le faisceau incident, et ainsi d'extraire le signal de diffusion Thomson, même faible, du spectre enregistré. Appliqué à une source d'ions à basse température, le spectre de diffusion Thomson incohérente a alors permis aux auteurs de déterminer des densités électroniques de l'ordre de  $10^{16} \text{ m}^{-3}$  et des températures inférieures à quelques eV dans une source plasma à cathode creuse. Appliqué en diffusion Thomson cohérente, il serait probablement possible d'obtenir, de façon satisfaisante, au moins les ailes de la partie ionique du spectre, afin d'en extraire le rapport  $T_e/T_i$  au point de mesure.

### 6.3 Études de paramètres Stark de raies spectrales

Enfin, hormis toute considération sur l'état d'équilibre du plasma, nous avons pu montrer l'efficacité de l'emploi simultané de la DT et de la SOE sur des plasmas induits par laser, pour déterminer les paramètres Stark de raies spectrales dans une large gamme de densités électroniques et de températures. Il est ainsi possible de proposer, en respectant la majorité des recommandations du NIST, des valeurs précises de la dépendance des élargissements et déplacements de raies d'éléments divers (gaz, solide) en fonction de  $N_e$  et  $T_e$ . Alors que ces données sont indispensables pour le diagnostic des plasmas d'intérêts scientifiques ou technologiques, il existe en réalité très peu de raies spectrales pour lesquelles la dépendance en fonction de la température a été étudiée : il serait donc intéressant d'étendre l'étude réalisée, à des raies spécifiques et relativement bien isolées, telles que par exemple les raies de fer utilisées pour le diagnostic des plasmas de soudage [204] par la méthode de Sola [205]–[208].

Ce sont également des données nécessaires pour mettre en œuvre la procédure d'analyse à deux étapes récemment proposée par Chia-Ting Chen et al. pour l'analyse de matériaux organiques par LIBS auto-calibrée [209]. Il s'agit alors de réaliser une première mesure dans les premiers instants de la décharge pour sonder les éléments majoritaires lorsque la densité électronique est suffisante pour assurer l'ETL, mais que le rapport signal spectral/bruit est relativement faible compte tenu de l'importance du continuum, puis de réaliser un enregistrement à un délai plus important (faible densité électronique, température réduite) sur des éléments métalliques minoritaires lorsque le plasma est en équilibre thermodynamique partiel (cf. *Figure 6-5* ci-après).

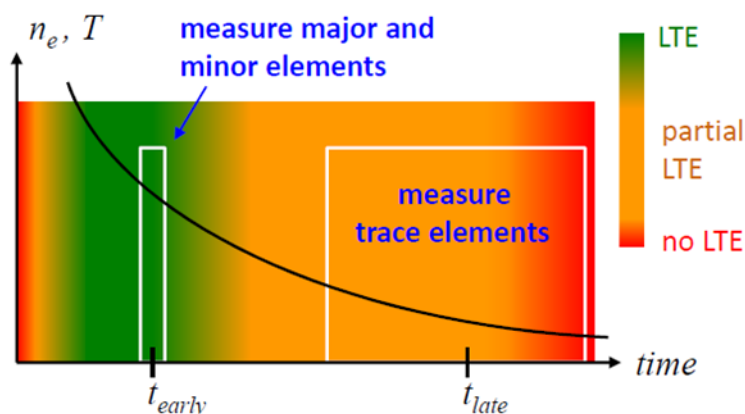


Figure 6-5 : Schéma temporel de la procédure d'analyse à deux étapes proposée par [208].

Au temps courts, la validité de l'ETL permet de quantifier les éléments majoritaires (C, H, O, N...) pour lesquels la condition d'équilibre est difficile à satisfaire ; la seconde étape en ETL partiel, permet de sonder les éléments minoritaires (métalliques) qui ont des distributions de populations en équilibre grâce aux faibles gaps d'énergie entre leurs niveaux d'excitation.

D'un point de vue plus fondamental, les données obtenues doivent permettre de valider les simulations *ab initio* de calcul des profils de raies spectrales [210], développés depuis plusieurs décennies, et dont les résultats n'ont jamais été confirmés expérimentalement sans ambiguïté. De telles études ont déjà été entreprises par K. Dzierżęga, E. Stambulchik et leurs collaborateurs pour vérifier l'influence des ions sur les profils de raies de la série de Balmer de l'hydrogène [211], ou sur les raies de Li I à 460 nm (avec des composantes interdites qui perturbent le profil) et celle bien isolée à 497 nm [212]. Des travaux similaires, basés sur les résultats présentés dans ce document, sont actuellement en cours sur la raie 696.5 nm d'Ar I.

#### 6.4 Évolution du dispositif expérimental : LIBS-Raman-LIF

S'il est possible d'observer la diffusion Thomson sur les électrons libres du plasma, d'autres phénomènes de diffusion sont simultanément possibles : diffusion Rayleigh sur les électrons liés, diffusion Raman sur les molécules, voire diffusion de Mie sur les particules de dimensions similaires à la longueur d'onde du rayonnement. L'intensité de ces différents mécanismes de diffusion dépend essentiellement des sections efficaces différentielles qui apparaissent dans l'équation 2.43. De la Fluorescence Induite par Laser (LIF : Laser Induced Fluorescence) peut également se produire, soit au niveau de la surface de l'échantillon, soit directement par les espèces présentes dans le plasma. L'exploitation de ces différents signaux, pour apporter des informations complémentaires notamment sur l'environnement de l'échantillon, serait potentiellement intéressante, et

mériterait une étude complète en profitant du banc expérimental dont nous disposons déjà.

L'autre ouverture possible concernerait la mise en place d'un dispositif hybride d'analyse d'une cible solide, associant grâce à une source laser unique, la spectroscopie induite par laser (LIBS), ainsi que la spectroscopie Raman et éventuellement les signaux de fluorescence [213], [214] :

- La LIBS est une méthode micro-destructive sans contact permettant de détecter simultanément presque tous les éléments présents dans n'importe quel type d'échantillon.
- La spectroscopie Raman est une technique non invasive et non destructive, bien adaptée à l'identification qualitative des espèces présentes dans l'échantillon.
- Enfin, sous certaines conditions, la spectroscopie de fluorescence de l'échantillon peut apporter des informations sur des composants spécifiques [215], [216].

Il est par ailleurs possible, sans prélèvement, par ablations successives, d'avoir une analyse résolue en profondeur, sous réserve de savoir étalonner la quantité de matière ablatée à chaque impulsion [217]. Par conséquent, la combinaison de ces techniques pourrait fournir des informations complémentaires sur un échantillon inconnu, que ce soit sa composition élémentaire, mais également sa configuration moléculaire, en prenant en compte son hétérogénéité et en l'analysant stratigraphiquement à partir de sa surface.

Si pour ces techniques le montage optique est similaire, la difficulté principale réside dans le fait que les fluences laser nécessaires sont significativement différentes. Néanmoins, l'acquisition récente au laboratoire d'un nouveau laser YAG permettant de récupérer simultanément les doubles longueurs d'onde à 1064 et 532 nm offre de nouvelles perspectives. Ainsi, l'impulsion laser de 1064 nm pourrait être utilisée pour l'excitation du signal LIBS, alors que le second harmonique du laser à 532 nm serait utilisé pour la spectroscopie Raman.

Un tel dispositif aurait toute son utilité notamment dans l'étude des verres du patrimoine, thématique importante en Région Centre-Val de Loire.



## 7 Bibliographie

- [1] M. Ribière, « Spectroscopies d'émission et d'absorption appliquées à l'analyse de plasmas produits par laser », *Thèse, Université de Rouen, 2008*.
- [2] C. Suplee, « Atomic Spectra Database », *NIST*. Disponible sur: <https://www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database>.
- [3] H. R. Griem, « Plasma spectroscopy ». *New York : McGraw-Hill, 1964*.
- [4] H. R. Griem, « Validity of Local Thermal Equilibrium in Plasma Spectroscopy », *Phys. Rev.*, vol. 131, n° 3, p. 1170-1176, août 1963.
- [5] R. McWhirter, « Plasma Diagnostic Techniques ». *Academic Press, New York, 1965*.
- [6] H. W. Drawin, « Validity conditions for local thermodynamic equilibrium », *Z. Physik*, vol. 228, n° 2, p. 99-119, avr. 1969.
- [7] J. D. Hey, « Criteria for local thermal equilibrium in non-hydrogenic plasmas », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 16, n° 1, p. 69-75, janv. 1976.
- [8] H. van Regemorter, « Rate of Collisional Excitation in Stellar Atmospheres. », *The Astrophysical Journal*, vol. 136, p. 906, nov. 1962.
- [9] G. Cristoforetti et al., « Local Thermodynamic Equilibrium in Laser-Induced Breakdown Spectroscopy: Beyond the McWhirter criterion », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 65, n° 1, p. 86-95, janv. 2010.
- [10] S. Vacquié, *L'arc électrique*. Paris, France: CNRS éd. : Eyrolles, 2000.
- [11] J. G. Lacombe, « Transferts radiatifs dans les plasmas thermiques », *Thèse, Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG*, p. 1-179, 2009.
- [12] L. M. Biberman et G. E. Norman, « On the Calculation of Photoionization Absorption », *Optics and Spectroscopy*, vol. 8, p. 230, avr. 1960.
- [13] L. M. Biberman, G. E. Norman, et K. N. Ulyanov, « On the Calculation of Photoionization Absorption in Atomic Gases », *Optics and Spectroscopy*, vol. 10, p. 297, mai 1961.
- [14] D. Hofsaess, « Photoionization cross sections calculated by the scaled Thomas-Fermi method ( $h\nu \approx 50$  eV) », *Atomic Data And Nuclear Data Tables*, vol. 24, p. 285-321, 1979.
- [15] G. D. Izarra, « Diagnostic des zones périphériques d'arcs électriques et des décharges hors-équilibre », *Thèse, Université d'Orléans*, p. 1-301, 2013.
- [16] N. J. A. Kagie, « Continuum emission as a diagnostic for the electron density at Pilot-PSI », *Bachelor thesis, Utrecht University*, 19-sept-2013.
- [17] A. F. Sougueh, « Spectroscopie optique d'émission et spectroscopie laser pour le diagnostic des plasmas induits par laser », *Thèse, Université d'Orléans, France, 2015*.
- [18] K. Giroux, « Étude critique de la densité électronique et des températures (excitation et ionisation) d'un plasma d'aluminium induit par laser », *Mémoire, Université de Montréal*, avr. 2010.
- [19] M. Cvejić, K. Dzierżęga, et T. Pięta, « Investigation of thermodynamic equilibrium in laser-induced aluminum plasma using the H $\alpha$  line profiles and Thomson scattering spectra », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 107, n° 2, p. 024102, juill. 2015.
- [20] R. Hannachi, « Etude expérimentale et propriétés radiatives d'un plasma thermique induit par impact laser à la surface de milieux aqueux eau-chlorure de calcium/chlorure de magnésium/chlorure de sodium », *Thèse, Université Toulouse III - Paul Sabatier, 2007*.

## Bibliographie

- [21] H. R. Griem, « Stark Broadening of Isolated Spectral Lines from Heavy Elements in a Plasma », *Phys. Rev.*, vol. 128, n° 2, p. 515-523, oct. 1962.
- [22] N. Konjevic, A. Lesage, J. R. Fuhr, et W. L. Wiese, « Experimental Stark Widths and Shifts for Spectral Lines of Neutral and Ionized Atoms », *J. Phys. Chem. Ref. Data*, vol. 31, n° 3, p. 109, 2002.
- [23] S. Pellerin, K. Musiol, B. Pokrzywka, et J. Chapelle, « Stark width of - Ar I transition (696.543 nm) », *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 29, n° 17, p. 3911-3924, sept. 1996.
- [24] J. R. Fuhr, W. L. Wiese, et L. J. Roszman, « Bibliography on atomic line shapes and shifts (1889 through March 1972) ». *National Bureau of Standards*, 1972.
- [25] W. Olchawa, R. Olchawa, et B. Grabowski, « Stark broadening of hydrogen spectral lines with fine structure effects », *Eur. Phys. J. D*, vol. 28, n° 1, p. 119-124, janv. 2004.
- [26] M. A. Gigosos, S. Djurović, I. Savić, D. González-Herrero, Z. Mijatović, et R. Kobilarov, « Stark broadening of lines from transition between states  $n = 3$  to  $n = 2$  in neutral helium: An experimental and computer-simulation study », *Astronomy & Astrophysics*, vol. 561, p. 1-13, janv. 2014.
- [27] L. Montgomery Smith, D. R. Keefer, et S. I. Sudharsanan, « Abel inversion using transform techniques », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 39, n° 5, p. 367-373, mai 1988.
- [28] J. D. Algeo et M. B. Denton, « On the Use of the Inverted Abel Integral for Evaluating Spectroscopic Sources », *Appl. Spectrosc., AS*, vol. 35, n° 1, p. 35-42, janv. 1981.
- [29] R. Álvarez, A. Rodero, et M. C. Quintero, « An Abel inversion method for radially resolved measurements in the axial injection torch », *Spectrochimica Acta*, vol. 57, p. 1665-1680, nov. 2002.
- [30] J. Glasser, J. Chapelle, et J. C. Boettner, « Abel inversion applied to plasma spectroscopy: a new interactive method », *Appl. Opt., AO*, vol. 17, n° 23, p. 3750-3754, déc. 1978.
- [31] P. L. Smith, C. Heise, J. R. Esmond, et R. L. Kurucz, « Atomic spectral line database from CD-ROM 23 of R. L. Kurucz. » Disponible sur:  
<https://www.cfa.harvard.edu/amp/ampdata/kurucz23/sekur.html>.
- [32] S. Yalcin, D. R. Crosley, G. P. Smith, et G. W. Faris, « Influence of ambient conditions on the laser air spark », *Applied Physics B*, vol. 68, p. 121-130, 1999.
- [33] C. A. Bye et A. Scheeline, « Saha-Boltzmann Statistics for Determination of Electron Temperature and Density in Spark Discharges Using an Echelle/CCD System », *Appl. Spectrosc., AS*, vol. 47, n° 12, p. 2022-2030, déc. 1993.
- [34] J. A. Aguilera et C. Aragón, « Multi-element Saha-Boltzmann and Boltzmann plots in laser-induced plasmas », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 62, n° 4, p. 378-385, avr. 2007.
- [35] A. Lesage, « Experimental Stark widths and shifts for spectral lines of neutral and ionized atoms A critical review of selected data for the period 2001-2007 », *New Astronomy Reviews*, vol. 52, n° 11-12, p. 471-535, févr. 2009.
- [36] J. J. Thomson, « Conduction of electricity through gases ». *Cambridge University Press*, 1906.
- [37] P. A. Forsyth, B. W. Currie, et F. E. Vawter, « Scattering of 56-Mc./s. Radio Waves from the Lower Ionosphere », *Nature*, vol. 171, n° 4347, p. 352-353, févr. 1953.
- [38] D. K. Bailey et al., « A New Kind of Radio Propagation at Very High Frequencies Observable over Long Distances », *Phys. Rev.*, vol. 86, n° 2, p. 141-145, avr. 1952.
- [39] D. E. Evans et J. Katzenstein, « Laser light scattering in laboratory plasmas », *Reports on Progress in Physics*, vol. 32, n° 1, p. 207-271, janv. 1969.

## Bibliographie

- [40] N. J. Peacock, D. C. Robinson, M. J. Forrest, P. D. Wilcock, et V. V. Sannikov, « Measurement of the Electron Temperature by Thomson Scattering in Tokamak T3 », *Nature*, vol. 224, n° 5218, p. 488-490, nov. 1969.
- [41] L. D. Landau et E. M. Lifshitz, « The Classical Theory of Fields », *Pergamon Press*, vol. 2, p. 1-387, 1967.
- [42] D. H. Froula et J. Sheffield, « Plasma scattering of electromagnetic radiation: theory and measurement techniques », 2. ed. *Amsterdam: Elsevier*, 2011.
- [43] B. D. Fried et S. D. Conte, « The Plasma Dispersion Function », *Elsevier*, 1961.
- [44] E. E. Salpeter, « Electron Density Fluctuations in a Plasma », *Phys. Rev.*, vol. 120, n° 5, p. 1528-1535, déc. 1960.
- [45] A. F. H. van Gessel, E. A. D. Carbone, P. J. Bruggeman, et J. J. A. M. van der Mullen, « Laser scattering on an atmospheric pressure plasma jet: disentangling Rayleigh, Raman and Thomson scattering », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 21, n° 1, p. 015003, févr. 2012.
- [46] K. Dzierżęga, A. Mendys, et B. Pokrzywka, « What can we learn about laser-induced plasmas from Thomson scattering experiments », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 98, p. 76-86, août 2014.
- [47] R. Dobashi, « Risk of dust explosions of combustible nanomaterials », *J. Phys.: Conf. Ser.*, vol. 170, p. 1-6, mai 2009.
- [48] D. Hu, Z. Chen, et X. Chen, « Risk Evaluation of Dust Explosion in Factory with Dust Filters », *Journal of Applied Science and Engineering*, vol. 20, n° 3, p. 295-298, 2017.
- [49] « Directive n° 1999/92/CE du 16/12/99 (quinzième directive particulière au sens de l'article 16, paragraphe 1, de la directive 89/391/CEE) | AIDA ».
- [50] T. Miller et J. Herr, « Green Rocket Propulsion by Reaction of Al and Mg Powders and Water », *40th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit*, Fort Lauderdale, Florida, 2004.
- [51] J. M. Bergthorson et al., « Direct combustion of recyclable metal fuels for zero-carbon heat and power », *Applied Energy*, vol. 160, p. 368-382, déc. 2015.
- [52] R. Lomba, « Utilisation de la combustion métallique dans les machines thermiques », *Thèse, Université d'Orléans*, p. 1-201, 2016.
- [53] A. J. Pinkerton, « Lasers in additive manufacturing », *Optics & Laser Technology*, vol. 78, p. 25-32, avr. 2016.
- [54] F. Klocke, K. Arntz, M. Teli, K. Winands, M. Wegener, et S. Oliari, « State-of-the-art Laser Additive Manufacturing for Hot-work Tool Steels », *Procedia CIRP*, vol. 63, p. 58-63, 2017.
- [55] Y. Hu et W. Cong, « A review on laser deposition-additive manufacturing of ceramics and ceramic reinforced metal matrix composites », *Ceramics International*, vol. 44, n° 17, p. 20599-20612, août 2018.
- [56] R. M. Mahamood et E. T. Akinlabi, « Chapter 21 - Laser-Assisted Additive Fabrication of Micro-Sized Coatings », in *Advances in Laser Materials Processing (Second Edition)*, J. Lawrence, Éd. Woodhead Publishing, 2018, p. 635-664.
- [57] J. J. Lee et J. E. Shepherd, « Spark Ignition Measurements in Jet A: part II », *Graduate Aeronautical Laboratories, California Institute of Technology*, p. 1-78, 2000.
- [58] S. P. M. Bane, « Spark Ignition: Experimental and Numerical Investigation With Application to Aviation Safety », *PhD Thesis, California Institute of Technology*, p. 1-284, 2010.
- [59] S. Bernard, K. Lebecki, P. Gillard, L. Youinou, et G. Baudry, « Statistical method for the determination of the ignition energy of dust cloud-experimental validation », *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 23, n° 3, p. 404-411, mai 2010.

## Bibliographie

- [60] S. Bernard, P. Gillard, et F. Frascati, « Ignition and explosibility of aluminium alloys used in Additive Layer Manufacturing », *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 49, p. 888-895, sept. 2017.
- [61] H. J. Langlie, « A Reliability Test Method for “One-Shot” Items », *Aeronutronic Division, Ford Motor Company*, p. 1-16, 1962.
- [62] M. Sankhé, S. Bernard, S. Pellerin, P. Gillard, et M. Wartel, « Pyrometric and Spectroscopic Measurements of Temperatures of Metallic Dust Combustion Ignited by Characterized Spark Discharge in a Hartmann Tube », *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 47, n° 1, p. 488-499, 2019.
- [63] O. O. Akindele, D. Bradley, P. W. Mak, et M. McMahan, « Spark ignition of turbulent gases », *Combustion and Flame*, vol. 47, p. 129-155, janv. 1982.
- [64] S. Refael et E. Sher, « A theoretical study of the ignition of a reactive medium by means of an electrical discharge », *Combustion and Flame*, vol. 59, n° 1, p. 17-30, janv. 1985.
- [65] U. Maas et J. Warnatz, « Ignition processes in hydrogen-oxygen mixtures », *Combustion and Flame*, vol. 74, n° 1, p. 53-69, oct. 1988.
- [66] M. Akram, « Two-dimensional model for spark discharge simulation in air », *AIAA Journal*, vol. 34, n° 9, p. 1835-1842, sept. 1996.
- [67] R. Reinmann et M. Akram, « Temporal investigation of a fast spark discharge in chemically inert gases », *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 30, n° 7, p. 1125-1134, avr. 1997.
- [68] O. Ekici, O. A. Ezekoye, M. J. Hall, et R. D. Matthews, « Thermal and Flow Fields Modeling of Fast Spark Discharges in Air », *J. Fluids Eng*, vol. 129, n° 1, p. 55-65, juin 2006.
- [69] C. D. Rakopoulos, G. M. Kosmadakis, et E. G. Pariotis, « Evaluation of a combustion model for the simulation of hydrogen spark-ignition engines using a CFD code », *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 35, n° 22, p. 12545-12560, nov. 2010.
- [70] N. Babkovskaia, N. E. L. Haugen, et A. Brandenburg, « A high-order public domain code for direct numerical simulations of turbulent combustion », *Journal of Computational Physics*, 2011.
- [71] « Potentially explosive atmospheres Explosion prevention and protection Determination of minimum ignition energy of dust/air mixtures, Standard EN 13821, 2002. ». Disponible sur: <https://standards.globalspec.com/std/639851/EN%2013821>.
- [72] A. Janes, J. Chaineaux, D. Carson, et P. A. Le Lore, « MIKE 3 versus HARTMANN apparatus: comparison of measured minimum ignition energy (MIE) », *J. Hazard. Mater.*, vol. 152, n° 1, p. 32-39, mars 2008.
- [73] M. Jacobson, A. R. Cooper, et J. Nagy, « Explosibility of Metal Powders », *Bureau Mines, U.S. Dept. Interior, Washington, DC, USA*, vol. Tech. Rep. 6516, p. 631, 1964.
- [74] « Explosive Atmospheres-Part 20-2: Material Characteristics-Combustible Dusts Test Methods, document ISO/IEC 80079-20-2:2016 », *ISO*, 2016.
- [75] G. Baudry, S. Bernard, et P. Gillard, « Influence of the oxide content on the ignition energies of aluminium powders », *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 20, n° 4, p. 330-336, juill. 2007.
- [76] K. L. Cashdollar, « Coal dust explosibility », *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 9, n° 1, p. 65-76, janv. 1996.
- [77] S. Mohan, M. A. Trunov, et E. L. Dreizin, « Heating and Ignition of Metal Particles in the Transition Heat Transfer Regime », *J. Heat Transfer*, vol. 130, n° 10, p. 104505, oct. 2008.

## Bibliographie

- [78] S. Pellerin, S. Bernard, P. Gillard, M. Wartel, et M. L. Sankhe, « Electric spark discharge in air characterization by following electrodes erosion », in *20th International Conference on Gas Discharges and their Applications (GD 2014)*, Orléans, France, 2014, p. 626.
- [79] S. Hosseinzadeh, M. Vanierschot, F. Norman, F. Verplaetsen, et J. Berghmans, « Flame propagation and flow field measurements in a Hartmann dust explosion tube », *Powder Technology*, vol. 323, p. 346-356, janv. 2018.
- [80] Y. Yin, J. Sun, Y. Ding, S. Guo, et X. He, « Experimental study on flames propagating through zirconium particle clouds », *J. Hazard. Mater.*, vol. 170, n° 1, p. 340-344, oct. 2009.
- [81] Z. Chen, « On the accuracy of laminar flame speeds measured from outwardly propagating spherical flames: Methane/air at normal temperature and pressure », *Combustion and Flame*, vol. 162, n° 6, p. 2442-2453, juin 2015.
- [82] D. W. Mackowski, R. A. Altenkirch, R. E. Peck, et T. W. Tong, « A Method for Particle and Gas Temperature Measurement in Laboratory-Scale, Pulverized-Coal Flames », *Combustion Science and Technology*, vol. 31, n° 3-4, p. 139-153, avr. 1983.
- [83] K. L. Cashdollar et I. A. Zlochower, « Explosion temperatures and pressures of metals and other elemental dust clouds », *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 20, n° 4-6, p. 337-348, juill. 2007.
- [84] A.-M. Pointu, J. Perrin, et J. Jolly, « Plasmas froids de décharge - Propriétés électriques », *Techniques de l'ingénieur*, 1998. .
- [85] R. H. Fowler et L. Nordheim, « Electron Emission in Intense Electric Fields », *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, vol. 119, n° 781, p. 173-181, 1928.
- [86] A. Sommerfeld, « Zur Elektronentheorie der Metalle auf Grund der Fermischen Statistik », *Z. Physik*, vol. 47, n° 1, p. 1-32, janv. 1928.
- [87] R. Boutoudj, « Conception technologique et modélisations de réseaux de micropointes à émission par effet de champ sur matériau GaAs » *Thèse, Université des Sciences et Technologies de Lille*, p. 204, 2002.
- [88] E. L. Murphy et R. H. Good, « Thermionic Emission, Field Emission, and the Transition Region », *Phys. Rev.*, vol. 102, n° 6, p. 1464-1473, juin 1956.
- [89] E. Casado, V. Colomer, E. Muñoz-Serrano, et R. Sicilia, « An experimental comparison of the erosion in tungsten cathodes doped with different rare-earth elements », *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 35, n° 10, p. 992-997, mai 2002.
- [90] J. A. Sillero, D. Ortega, E. Muñoz-Serrano, et E. Casado, « An experimental study of thoriaated tungsten cathodes operating at different current intensities in an atmospheric-pressure plasma torch », *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 43, n° 18, p. 185204, mai 2010.
- [91] A. A. Sadek, M. Ushio, et F. Matsuda, « Effect of rare earth metal oxide additions to tungsten electrodes », *MTA*, vol. 21, n° 12, p. 3221-3236, déc. 1990.
- [92] M. Sankhé, S. Bernard, M. Wartel, S. Pellerin, et P. Gillard, « Characterization of a spark discharge for dust cloud ignition », *Contributions to Plasma Physics*, nov. 2018.
- [93] V. A. Nemchinsky, « Life time of a refractory cathode doped with a work-function-lowering dopant », *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 29, n° 9, p. 2417-2422, sept. 1996.
- [94] J. Heberlein, « Electrode Phenomena in Plasma Torches », *Annals of the New York Academy of Sciences*, vol. 891, n° 1, p. 14-27, déc. 1999.

## Bibliographie

- [95] J. de Cachard, F. Millot, K. Cadoret, L. Martinez, et D. Veillet, « New doped tungsten cathodes. Applications to power grid tubes. », *15th International Plansee Seminar*, vol. 1, p. 1-15, 2001.
- [96] P. Paschen, « Alternatives to thorium additions to tungsten-based materials », *JOM*, vol. 48, n° 1, p. 45-47, janv. 1996.
- [97] M. Ushio, A. A. Sadek, et F. Matsuda, « Comparison of temperature and work function measurements obtained with different GTA electrodes », *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, vol. 11, n° 1, p. 81-101, mars 1991.
- [98] T. C. Williams et C. R. Shaddix, « Simultaneous correction of flat field and nonlinearity response of intensified charge-coupled devices », *Review of Scientific Instruments*, vol. 78, n° 12, p. 123702, déc. 2007.
- [99] I. van Cruyningen, A. Lozano, et R. K. Hanson, « Quantitative imaging of concentration by planar laser-induced fluorescence », *Experiments in Fluids*, vol. 10, n° 1, p. 41-49, oct. 1990.
- [100] R. E. Turner et al., « Comparison of charge coupled device vs film readouts for gated micro-channel plate cameras », *Review of Scientific Instruments*, vol. 72, n° 1, p. 706-708, janv. 2001.
- [101] K. L. Cashdollar, « Overview of dust explosibility characteristics », *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 13, n° 3, p. 183-199, mai 2000.
- [102] R. K. Eckhoff et E. Randeberg, « Electrostatic spark ignition of sensitive dust clouds of MIE<1mJ », *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 20, n° 4, p. 396-401, juill. 2007.
- [103] R. Maly et M. Vogel, « Initiation and propagation of flame fronts in lean CH<sub>4</sub>-air mixtures by the three modes of the ignition spark », *Symposium (International) on Combustion*, vol. 17, n° 1, p. 821-831, janv. 1979.
- [104] V. Kurochkin et L. Kravchenko, « Interaction of a Spark Discharge with W-Cu Electrodes Alloyed by REE », *High Temperature Materials and Processes*, vol. 19, n° 6, p. 427-434, 2011.
- [105] C. Zaepffel, D. Hong, et J.-M. Bauchire, « Experimental study of an electrical discharge used in reactive media ignition », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 40, n° 4, p. 1052, 2007.
- [106] J. J. Lowke, R. Morrow, et J. Haidar, « A simplified unified theory of arcs and their electrodes », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 30, n° 14, p. 2033, 1997.
- [107] L. Sansonnens, J. Haidar, et J. J. Lowke, « Prediction of properties of free burning arcs including effects of ambipolar diffusion », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 33, n° 2, p. 148, 2000.
- [108] C. O. Laux, *SpecAir* : <http://www.specair-radiation.net/>. *Optical Diagnostics and Collisional-Radiative Models. VKI Course on Hypersonic Entry and Cruise Vehicles*. Stanford University, 2008.
- [109] P. Gillard, C. de Izarra, et M. Roux, « Study of the Radiation Emitted During the Combustion of Pyrotechnic Charges. Part II: Characterization by Fast Visualization and Spectroscopic Measurements », *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, vol. 27, n° 2, p. 80-87, 2002.
- [110] T. Bazyn, H. Krier, et N. Glumac, « Evidence for the transition from the diffusion-limit in aluminum particle combustion », *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 2, n° 31, p. 2021-2028, 2007.
- [111] P. E. Bocanegra, D. Davidenko, V. Sarou-Kanian, C. Chauveau, et I. Gökalp, « Experimental and numerical studies on the burning of aluminum micro and nanoparticle clouds in air », *Experimental Thermal and Fluid Science*, vol. 3, n° 34, p. 299-307, 2010.

## Bibliographie

- [112] N. I. Poletaev et A. V. Florko, « Spectral studies of the gas component of an aluminum dust flame », *Combust Explos Shock Waves*, vol. 44, n° 4, p. 437-443, juill. 2008.
- [113] J. Hermann, « System and method for the quantitative analysis of the elementary composition of matter by laser-induced plasma spectroscopy (libs) », *World Intellectual Property Organization*, 14-mai-2010.
- [114] P. Bucher, R. A. Yetter, F. L. Dryer, T. P. Parr, D. M. Hanson-Parr, et E. P. Viceni, « Flames structure measurement of single, isolated aluminum particles burning in air », *Symposium (International) on Combustion*, vol. 26, n° 2, p. 1899-1908, janv. 1996.
- [115] W. Ao, X. Liu, H. Rezaiguia, H. Liu, Z. Wang, et P. Liu, « Aluminum agglomeration involving the second mergence of agglomerates on the solid propellants burning surface: Experiments and modeling », *Acta Astronautica*, vol. 136, p. 219-229, juill. 2017.
- [116] D. Skinner, D. Olson, et A. Block-Bolten, « Electrostatic Discharge Ignition of Energetic Materials », *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, vol. 23, n° 1, p. 34-42, 1998.
- [117] E. Beloni et E. L. Dreizin, « Experimental study of ignition of magnesium powder by electro-static discharge », *Combustion and Flame*, vol. 156, p. 1386-1395, 1998.
- [118] E. Beloni et E. L. Dreizin, « Ignition of aluminum powders by electrostatic discharge », *Combustion and Flame*, vol. 157, p. 1346-1355, 2010.
- [119] F. Breech et L. Cross, « Optical micromission stimulated by a ruby laser », *Applied Spectroscopy*, vol. 16, p. 59, 1962.
- [120] J. Debras-Guédon et N. Liodec, « De l'utilisation du faisceau d'un amplificateur à ondes lumineuses par émission induite de rayonnement (laser à rubis), comme source énergétique pour l'excitation des spectres d'émission des éléments », *Académie des Sciences – Comptes Rendus*, vol. 257, p. 3336 – 3339, 1963.
- [121] D. A. Cremers et L. J. Radziemski, « Handbook of Laser-Induced Breakdown Spectroscopy ». *Wiley*, 2006.
- [122] J. Rakovský, P. Čermák, O. Musset, et P. Veis, « A review of the development of portable laser induced breakdown spectroscopy and its applications », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 101, p. 269-287, nov. 2014.
- [123] B. Sallé, J.-L. Lacour, P. Mauchien, P. Fichet, S. Maurice, et G. Manhès, « Comparative study of different methodologies for quantitative rock analysis by Laser-Induced Breakdown Spectroscopy in a simulated Martian atmosphere », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 61, n° 3, p. 301-313, mars 2006.
- [124] S. M. Clegg, E. Sklute, M. D. Dyar, J. E. Barefield, et R. C. Wiens, « Multivariate analysis of remote laser-induced breakdown spectroscopy spectra using partial least squares, principal component analysis, and related techniques », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 64, n° 1, p. 79-88, janv. 2009.
- [125] T. Takahashi et B. Thornton, « Quantitative methods for compensation of matrix effects and self-absorption in Laser Induced Breakdown Spectroscopy signals of solids », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 138, p. 31-42, déc. 2017.
- [126] A. Ciucci, V. Palleschi, S. Rastelli, A. Salvetti, D. P. Singh, et E. Tognoni, « CF-LIPS: A new approach to LIPS spectra analysis », *Laser and Particle Beams*, vol. 17, n° 04, oct. 1999.
- [127] M. J. Goeckner et J. Goree, « Laser-induced fluorescence measurement of plasma ion temperatures: Corrections for power saturation », *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films*, vol. 7, n° 3, p. 977-981, mai 1989.

## Bibliographie

- [128] T. Freearde et G. Hancock, « A Guide to Laser-Induced Fluorescence Diagnostics in Plasmas », *Journal de Physique IV Colloque*, vol. 07, n° C4, p. C4-15-C4-29, 1997.
- [129] W. L. Kruer, « The physics of laser plasma interactions », *Plasma Physics And Fusion Technology*, vol. 73, 1988.
- [130] Y. Zhao, S. Weng, M. Chen, J. Zheng, H. Zhuo, et Z. Sheng, « Stimulated Raman scattering excited by incoherent light in plasma », *Matter and Radiation at Extremes*, vol. 2, n° 4, p. 190-196, juill. 2017.
- [131] S. H. Glenzer et al., « Thomson scattering from laser plasmas », *Physics of Plasmas*, vol. 6, n° 5, p. 2117-2128, mai 1999.
- [132] H. J. Kunze, A. Dinklage, T. Klinger, G. Marx, et L. Schweikhard, « *Plasma Physics: Confinement, Transport and Collective Effects* », Springer Berlin Heidelberg, p. 349-373, 2005.
- [133] P. Schaaf, « Laser Processing of Materials: Fundamentals, Applications and Developments », *Berlin Heidelberg: Springer-Verlag*, 2010.
- [134] Y. P. Raizer, « Breakdown and heating of gases under the influence of a laser beam », *Sov. Phys. Usp.*, vol. 8, n° 5, p. 650, 1966.
- [135] J. L. Delcroix, « Processus atomiques et moléculaires. Gaz faiblement ionisés », *Le Journal de Physique Colloques*, vol. 29, n° C3, p. C3-3-C3-14, avr. 1968.
- [136] V. Chalmeton, « Étude de la phase initiale du claquage d'un gaz par un laser », *Journal de Physique*, vol. 30, n° 8-9, p. 687-699, 1969.
- [137] A. J. Effenberger et J. R. Scott, « Effect of atmosphere on collinear double-pulse laser-induced breakdown spectroscopy », *Anal Bioanal Chem*, vol. 400, n° 10, p. 3217-3227, juill. 2011.
- [138] M. A. Gondal et A. A. I. Khalil, « Effect of ambient conditions on laser-induced breakdown spectra », *Laser Phys.*, vol. 22, n° 12, p. 1771-1779, déc. 2012.
- [139] J. A. Merten, B. W. Smith, et N. Omenetto, « Local thermodynamic equilibrium considerations in powerchip laser-induced plasmas », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 83-84, p. 50-55, mai 2013.
- [140] S. S. Harilal, C. V. Bindhu, V. P. N. Nampoori, et C. P. G. Vallabhan, « Influence of ambient gas on the temperature and density of laser produced carbon plasma », *Applied Physics Letters*, vol. 72, n° 2, p. 167-169, janv. 1998.
- [141] J. Hermann, C. Gerhard, E. Axente, et C. Dutouquet, « Comparative investigation of laser ablation plumes in air and argon by analysis of spectral line shapes: Insights on calibration-free laser-induced breakdown spectroscopy », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 100, p. 189-196, oct. 2014.
- [142] N. Kroll et K. M. Watson, « Theoretical Study of Ionization of Air by Intense Laser Pulses », *Physical Review A*, vol. 5, n° 4, p. 1883-1905, avr. 1972.
- [143] R. J. Dewhurst, « Comparative data on molecular gas breakdown thresholds in high laser-radiation fields », *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 11, n° 16, p. L191-L195, nov. 1978.
- [144] V. Morel, « Dynamique de la création d'un plasma d'aluminium induit par laser : Elaboration et validation d'un modèle collisionnel-radiatif », *Thèse, Université de Rouen*, 2011.
- [145] A. E. Siegman, « Lasers », *University Science Books*, 1986.
- [146] T. X. Phuoc, « Laser spark ignition: experimental determination of laser-induced breakdown thresholds of combustion gases », *Optics Communications*, vol. 175, n° 4-6, p. 419-423, mars 2000.
- [147] R. George, « Développement de nouvelles stratégies d'allumage laser : application à la propulsion aéronautique et/ou spatiale », *Thèse, Université Paris-Saclay*, 2017.



## Bibliographie

- [148] C. V. Bindhu, S. S. Harilal, M. S. Tillack, F. Najmabadi, et A. C. Gaeris, « Laser propagation and energy absorption by an argon spark », *Journal of Applied Physics*, vol. 94, n° 12, p. 7402, 2003.
- [149] J. Stricker et J. G. Parker, « Experimental investigation of electrical breakdown in nitrogen and oxygen induced by focused laser radiation at 1.064  $\mu$  », *Journal of Applied Physics*, vol. 53, n° 2, p. 851-855, févr. 1982.
- [150] J. B. Simeonsson et A. W. Miziolek, « Spectroscopic studies of laser-produced plasmas formed in CO and CO<sub>2</sub> using 193, 266, 355, 532 and 1064 nm laser radiation », *Applied Physics B*, vol. 59, p. 1-9, 1994.
- [151] W. E. Williams, M. J. Soileau, et E. W. Van Stryland, « Picosecond air breakdown studies at 0.53  $\mu$ m », *Applied Physics Letters*, vol. 43, n° 4, p. 352-354, août 1983.
- [152] A. Semerok, B. Sallé, J.-F. Wagner, et G. Petite, « Femtosecond, picosecond, and nanosecond laser microablation: Laser plasma and crater investigation », *Laser and Particle Beams*, vol. 20, n° 1, p. 67-72, janv. 2002.
- [153] M. Hashida, A. F. Semerok, O. Gobert, G. Petite, Y. Izawa, et J. F.- Wagner, « Ablation threshold dependence on pulse duration for copper », *Applied Surface Science*, vol. 197-198, n° 1-4, p. 862-867, 2002.
- [154] E. Millon, J. Perrière, R. M. Défourneau, D. Défourneau, O. Albert, et J. Etchepare, « Femtosecond pulsed-laser deposition of BaTiO<sub>3</sub> », *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, vol. 77, n° 1, p. 73-80, juin 2003.
- [155] D. von der Linde et H. Schüler, « Breakdown threshold and plasma formation in femtosecond laser–solid interaction », *J. Opt. Soc. Am. B, JOSAB*, vol. 13, n° 1, p. 216-222, janv. 1996.
- [156] S. Galt, M. Sjöberg, M. Lopez Quiroga-Teixeiro, et S. Hård, « Optical breakdown in fused silica and argon gas: application to Nd:YAG laser limiter », *Appl Opt*, vol. 42, n° 3, p. 579-584, janv. 2003.
- [157] D. A. Cremers et L. J. Radziemski, « Laser plasmas for chemical analysis », *Laser spectroscopy and its applications*, 1987.
- [158] D. Goldstein et D. H. Goldstein, « Polarized Light, Revised and Expanded », *CRC Press*, 2003.
- [159] I. B. Gornushkin, N. Omenetto, B. W. Smith, et J. D. Winefordner, « Determination of the maximum temperature at the center of an optically thick laser-induced plasma using self-reversed spectral lines », *Appl Spectrosc*, vol. 58, n° 9, p. 1023-1031, sept. 2004.
- [160] X. Z. Zhao, L. J. Shen, T. X. Lu, et K. Niemax, « Spatial distributions of electron density in microplasmas produced by laser ablation of solids », *Appl. Phys. B*, vol. 55, n° 4, p. 327-330, oct. 1992.
- [161] I. N. Mihailescu et J. Hermann, « Laser Processing of Materials: Fundamentals, Applications and Developments », *Springer Berlin Heidelberg*, p. 49-88, 2010.
- [162] Q. Ma et al., « Ultraviolet versus infrared: Effects of ablation laser wavelength on the expansion of laser-induced plasma into one-atmosphere argon gas », *Journal of Applied Physics*, vol. 111, n° 5, p. 053301, mars 2012.
- [163] R. J. Lasheras, C. Bello-Gálvez, et J. M. Anzano, « Quantitative analysis of oxide materials by laser-induced breakdown spectroscopy with argon as an internal standard », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 82, p. 65-70, avr. 2013.
- [164] Y. Chen, J. W. L. Lewis, et C. Parigger, « Spatial and temporal profiles of pulsed laser-induced air plasma emissions », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, p. 91-103, 2000.

## Bibliographie

- [165] H. Sobral, M. Villagrán-Muniz, R. Navarro-González, et A. C. Raga, « Temporal evolution of the shock wave and hot core air in laser induced plasma », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 77, n° 20, p. 3158-3160, nov. 2000.
- [166] S. S. Harilal, « Spatial and temporal evolution of argon sparks », *Appl Opt*, vol. 43, n° 19, p. 3931-3937, juill. 2004.
- [167] V. Bakshi et R. J. Kearney, « Measurement of stark width of some Ar I transitions in A d.c. argon plasma jet at atmospheric pressure », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 42, n° 5, p. 405-413, nov. 1989.
- [168] K. Dzierzega et K. Musioł, « Stark broadening and shift for ArII lines », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 52, n° 6, p. 747-754, déc. 1994.
- [169] A. Mendys et al., « Investigations of laser-induced plasma in argon by Thomson scattering », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 66, n° 9, p. 691-697, sept. 2011.
- [170] A. B. Murphy, « Thomson scattering diagnostics of thermal plasmas: Laser heating of electrons and the existence of local thermodynamic equilibrium », *Phys Rev E Stat Nonlin Soft Matter Phys*, vol. 69, n° 1 Pt 2, p. 016408, janv. 2004.
- [171] K. Dzierżęga, W. Zawadzki, B. Pokrzywka, et S. Pellerin, « Experimental investigations of plasma perturbation in Thomson scattering applied to thermal plasma diagnostics », *Phys. Rev. E*, vol. 74, n° 2, p. 026404, août 2006.
- [172] Y. Vitel et M. Skowronek, « Noble gas line profiles in dense plasmas. I. Argon », *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, vol. 20, p. 6477-6491, déc. 1987.
- [173] N. Konjevic et W. L. Wiese, « Experimental Stark widths and shifts for non-hydrogenic spectral lines of ionized atoms », *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, vol. 5, n° 2, p. 259-308, avr. 1976.
- [174] J. C. Valognes, J. P. Bardet, S. A. Flih, et Y. Vitel, « New contribution to study on Stark broadenings of 6965 Å of Ar(I) spectral lineshapes in dense cold plasmas including levels of like and unlike parentage interactions », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 87, n° 3, p. 221-241, sept. 2004.
- [175] A. De Giacomo, R. Gaudio, M. Dell'Aglio, et A. Santagata, « The role of continuum radiation in laser induced plasma spectroscopy », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 65, n° 5, p. 385-394, mai 2010.
- [176] H. Amamou, A. Bois, B. Ferhat, R. Redon, B. Rossetto, et M. Ripert, « Correction of the self-absorption for reversed spectral lines: application to two resonance lines of neutral aluminium », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 77, n° 4, p. 365-372, avr. 2003.
- [177] A. Siyacoun, « Etude des propriétés radiatives des plasmas de gaz rares créés dans les tubes à éclairs », *Thèse*, Paris 6, 1992.
- [178] H. Bartels, « Der Einfluß erzwungener Übergänge und starker kontinuierlicher Emission auf die Linienkontur bei inhomogener Schicht », *Z. Physik*, vol. 136, n° 4, p. 411-440, août 1953.
- [179] Y. Vitel, « Experimental study of H $\alpha$  broadening and shift in dense argon plasmas », *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, vol. 20, n° 10, p. 2327-2337, mai 1987.
- [180] N. I. Uzelac et N. Konjevic, « Stark broadening and shift of Kr I and Kr II lines in dense plasma », *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 22, n° 16, p. 2517-2525, août 1989.
- [181] N. Konjević, « Plasma broadening and shifting of non-hydrogenic spectral lines: present status and applications », *Physics Reports*, vol. 316, p. 339-401, août 1999.
- [182] J. A. Aparicio, M. A. Gigosos, V. R. González, C. Pérez, M. I. de la Rosa, et S. Mar, « Measurement of Stark broadening and shift of singly ionized Ar lines », *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 31, n° 5, p. 1029, 1998.

## Bibliographie

- [183] B. Németh et L. Kozma, « Time-resolved optical emission spectrometry of Q-switched Nd:YAG laser-induced plasmas from copper targets in air at atmospheric pressure », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 50, n° 14, p. 1869-1888, déc. 1995.
- [184] M. Baudelet, C. C. C. Willis, L. Shah, et M. Richardson, « Laser-induced breakdown spectroscopy of copper with a 2  $\mu\text{m}$  thulium fiber laser », *Optics Express*, vol. 18, n° 8, p. 7905, avr. 2010.
- [185] A. B. Gojani, « Experimental Study of Laser-Induced Brass and Copper Plasma for Spectroscopic Applications », *International Scholarly Research Network*, 2012.
- [186] Y. Liu, B. Bousquet, M. Baudelet, et M. Richardson, « Improvement of the sensitivity for the measurement of copper concentrations in soil by microwave-assisted laser-induced breakdown spectroscopy », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 73, p. 89-92, juill. 2012.
- [187] G. Kurniawan, F. Sa'adah, et A. Khumaeni, « Emission characteristics of copper using laser-induced breakdown spectroscopy at low pressure », *Journal of Physics: Conference Series*, vol. 1025, p. 012003, mai 2018.
- [188] M. Cirisan, « Dynamique d'expansion de la plume-plasma formée lors d'un impact laser Nd: YAG nanoseconde sur une surface métallique en milieu atmosphérique: caractérisation expérimentale et simulation numérique », *Thèse, Université de Bourgogne*, p. 1-270, 2010.
- [189] M. Stafe et C. Negutu, « Real-Time Monitoring of the Pulsed Laser Ablation of Metals Using Ablation Plasma Spectroscopy », *Plasma Chem Plasma Process*, vol. 32, n° 3, p. 643-653, juin 2012.
- [190] J. Picard et al., « Characterization of laser ablation of copper in the irradiance regime of laser-induced breakdown spectroscopy analysis », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 101, p. 164-170, nov. 2014.
- [191] M. Hanif, M. Salik, et M. A. Baig, « Quantitative studies of copper plasma using laser induced breakdown spectroscopy », *Optics and Lasers in Engineering*, vol. 49, n° 12, p. 1456-1461, déc. 2011.
- [192] B. Zmerli, N. B. Nessib, M. S. Dimitrijevic, et S. Sahal-Brechot, « On the Stark broadening of CuI spectral lines », *Mem. S.A.It. Suppl.*, vol. 15, p. 152, 2010.
- [193] M. Millogo, « Allumage, combustion et explosion des poudres d'aluminium, de titane et de leurs alliages », *Thèse, Université d'Orléans*, 2019.
- [194] K. E. Evdokimov, M. E. Konischev, V. F. Pichugin, et Z. Sun, « Study of argon ions density and electron temperature and density in magnetron plasma by optical emission spectroscopy and collisional-radiative model », *Resource-Efficient Technologies*, vol. 3, n° 2, p. 187-193, juin 2017.
- [195] C. Gerhard et al., « Quantitative analyses of glass via laser-induced breakdown spectroscopy in argon », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 101, p. 32-45, nov. 2014.
- [196] J. Hermann, C. Boulmer-Leborgne, et D. Hong, « Diagnostics of the early phase of an ultraviolet laser induced plasma by spectral line analysis considering self-absorption », *Journal of Applied Physics*, vol. 83, n° 2, p. 691-696, janv. 1998.
- [197] L. Mercadier, J. Hermann, C. Grisolia, et A. Semerok, « Diagnostics of nonuniform plasmas for elemental analysis via laser-induced breakdown spectroscopy: demonstration on carbon-based materials », *J. Anal. At. Spectrom.*, vol. 28, n° 9, p. 1446-1455, août 2013.
- [198] K. Dzierżęga, A. Mendys, B. Pokrzywka, W. Zawadzki, et S. Pellerin, « Simultaneous measurement of electron and heavy particle temperatures in He laser-induced

## Bibliographie

- plasma by Thomson and Rayleigh scattering », *Applied Physics Letters*, vol. 102, n° 13, p. 134108, avr. 2013.
- [199] M. J. van de Sande et J. J. A. M. van der Mullen, « Thomson scattering on a low-pressure, inductively-coupled gas discharge lamp », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 35, n° 12, p. 1381, 2002.
- [200] E. A. D. Carbone et al., « Experimental investigation of the electron energy distribution function (EEDF) by Thomson scattering and optical emission spectroscopy », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 45, n° 47, p. 475202, 2012.
- [201] A. L. Glebov, O. Mokhun, A. Rapaport, S. Vergnole, V. Smirnov, et L. B. Glebov, « Volume Bragg gratings as ultra-narrow and multiband optical filters », présenté à *SPIE Photonics Europe*, Brussels, Belgium, p. 84280C, 2012.
- [202] B. L. M. Klarenaar, F. Brehmer, S. Welzel, H. J. van der Meiden, M. C. M. van de Sanden, et R. Engeln, « Note: Rotational Raman scattering on CO<sub>2</sub> plasma using a volume Bragg grating as a notch filter », *Rev Sci Instrum*, vol. 86, n° 4, p. 046106, avr. 2015.
- [203] B. Vincent, S. Tsikata, S. Mazouffre, T. Minea, et J. Fils, « A compact new incoherent Thomson scattering diagnostic for low-temperature plasma studies », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 27, n° 5, p. 055002, mai 2018.
- [204] S. Zielińska et al., « Investigations of GMAW plasma by optical emission spectroscopy », *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 16, n° 4, p. 832–838, oct. 2007.
- [205] A. Sola et al., « Book of Contributed Papers », *Italy: ICPIG XX Barga*, 1991.
- [206] J. Torres, J. Jonkers, M. J. van de Sande, J. J. A. M. van der Mullen, A. Gamero, et A. Sola, « An easy way to determine simultaneously the electron density and temperature in high-pressure plasmas by using Stark broadening », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 36, n° 13, p. L55–L59, juin 2003.
- [207] J. Torres, M. J. van de Sande, J. J. A. M. van der Mullen, A. Gamero, et A. Sola, « Stark broadening for simultaneous diagnostics of the electron density and temperature in atmospheric microwave discharges », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 61, n° 1, p. 58-68, janv. 2006.
- [208] J. Torres, J. M. Palomares, A. Sola, J. J. A. M. van der Mullen, et A. Gamero, « A Stark broadening method to determine simultaneously the electron temperature and density in high-pressure microwave plasmas », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 40, n° 19, p. 5929–5936, sept. 2007.
- [209] C. T. Chen, D. Banaru, T. Sarnet, et J. Hermann, « Two-step procedure for trace element analysis in food via calibration-free laser-induced breakdown spectroscopy », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 150, p. 77-85, déc. 2018.
- [210] E. Stambulchik et Y. Maron, « A study of ion-dynamics and correlation effects for spectral line broadening in plasma: K-shell lines », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 99, p. 730-749, mai 2006.
- [211] F. Sobczuk, K. Dzierżęga, E. Stambulchik, T. Pięta, et B. Pokrzywka, « Study of Stark broadened hydrogen line profiles using laser-induced plasma, laser Thomson scattering and ab initio computer simulations », *50th Anniversary EGAS conference, Krakow (Pl)*, p. 1, 13 juillet 2018.
- [212] K. Dzierżęga et al., « Study of Stark broadening of Li i 460 and 497 nm spectral lines with independent plasma diagnostics by Thomson scattering », *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 27, n° 2, p. 025013, févr. 2018.
- [213] Q. Lin, G. Niu, Q. Wang, Q. Yu, et Y. Duan, « Combined Laser-Induced Breakdown with Raman Spectroscopy: Historical Technology Development and Recent Applications », *Applied Spectroscopy Reviews*, vol. 48, n° 6, p. 487-508, août 2013.

## Bibliographie

- [214] V. N. Lednev et al., « Combining Raman and laser induced breakdown spectroscopy by double pulse lasing », *Anal Bioanal Chem*, vol. 410, n° 1, p. 277-286, janv. 2018.
- [215] M. Oujja, M. Sanz, E. Carrasco, et M. Castillejo, « LIF-Raman-LIBS analysis of heritage stones with a single set-up using UV pulsed laser excitation », vol. LACONA XI (Krakow), p. 1, sept. 2016.
- [216] D. Syvilay et al., « Laser-induced emission, fluorescence and Raman hybrid setup: A versatile instrument to analyze materials from cultural heritage », *Spectrochimica Acta*, vol. 140, p. 44-53, févr. 2018.
- [217] C. Focsa et al., « Laser-BNSiO<sub>2</sub> Ceramics Interaction: simulation of the energy deposition on dielectric wall surfaces in Hall thrusters », *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials*, vol. 10, n° 9, p. 2380 – 2385, 2008.
- [218] S. Pellerin, K. Musiol et J. Chapelle, « Measurement of Atomic Parameters of Singly Ionized Argon Lines-III. Stark Broadening Parameters », *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, vol. 57, n° 3, p. 377 – 393, 1997.
- [219] T. Pieta, « Description de l'expérimentation et des mesures effectuées », *Rapport interne du laboratoire Zaklad Fotoniki de l'Université Jagellon, Cracovie, Pologne*, 2019.

## 8 Annexe 1 : Générateur d'arc



4, route du Tronc - 18500 BERRY-BOUY  
Tel./Fax: 02 48 26 00 41  
e-mail: [daniel.lambert6@orange.fr](mailto:daniel.lambert6@orange.fr)

### GENERATEUR D'ARC - Modèle n°5 - Mars 2007

#### I - DESCRIPTION

##### 1) DESIGNATION

Générateur destiné à la production d'arc électrique à courant constant et à durée programmée.

##### 2) PRESENTATION: 1 Coffret de table 19" et 1 boîtier allumeur

###### Equipement en façade:

###### MESURES:

- 3 sorties U, I, et synchro sur BNC

###### COMMANDES:

- Inter M-A et voyant secteur
- Bouton coup-de-poing arrêt d'urgence
- Entrée ordre de tir sur DIN
- Sortie vers boîtier allumeur sur XLR

###### REGLAGES:

- Intensité d'arc par commutateur 3 positions
- Durée d'ouverture d'électro-vanne par roues codeuses
- Temps mort par roues codeuses
- Durée d'arc par roues codeuses

###### VISUALISATION:

- Durée du cycle
- Durée d'arc

###### Equipement à l'arrière:

- Entrée secteur IEE et fusible
- Sortie électro-vanne IEE et fusible

###### Equipement allumeur:

- Cable de liaison coffret (2 m)
- Sorties masse et HT pour électrodes (2x0,50 m)

##### 3) ACCESSOIRES

- 1 commande de tir à câble (3 m) par bouton-poussoir
- 1 cordon secteur.
- 1 fiche jack 6,35 mm électro-vanne



Figure 8-1 : Photo du générateur de décharges électriques.

## Annexes

### II - CARACTERISTIQUES

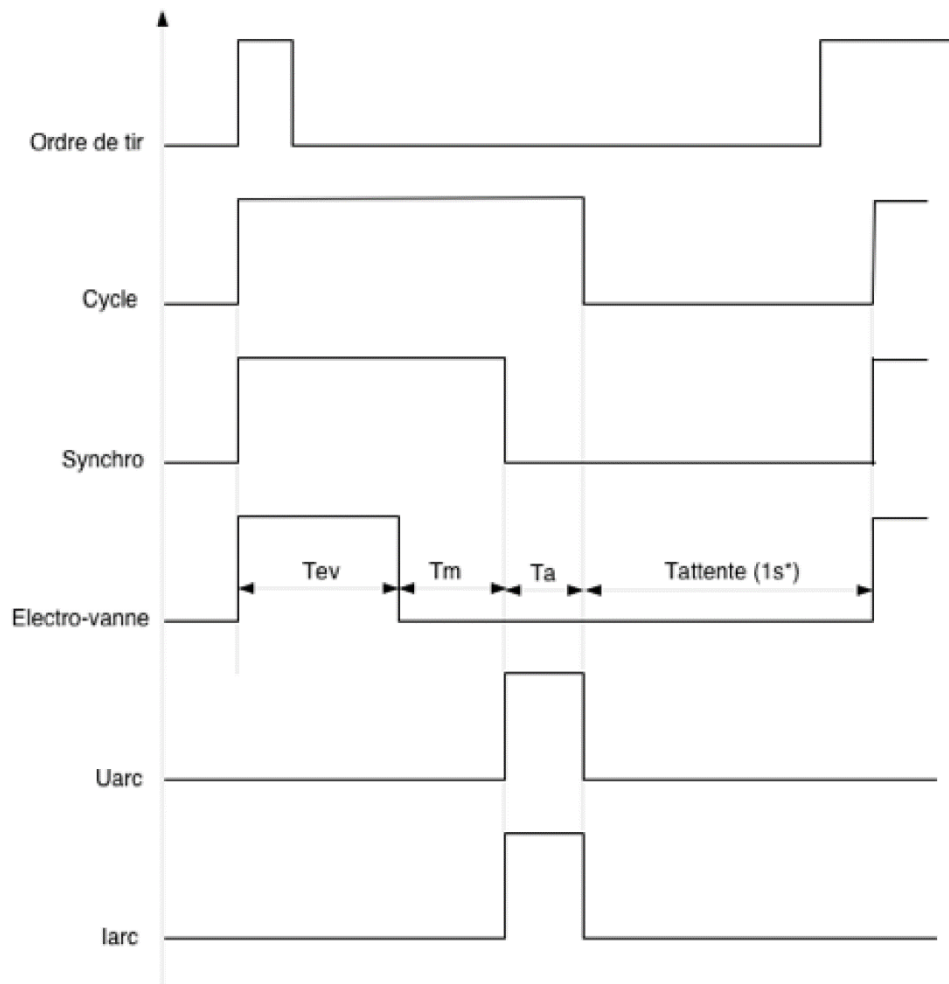
- Alimentation 220V +/-20% 4A
- Génération tension d'arc: 350V max. à vide.
- Distance inter-électrodes: <8 mm selon état et forme des électrodes.
- Dispositif d'amorçage: 20KV - 5 $\mu$ s (~20 mJ).
- Energie disponible: 50mJ à 500J (amorçage inclus).
- Courant fixé à 2A, 4A ou 8A (valeur moyenne).
- Alimentation électro-vanne: 220VAC - 22VA max.
- Réglage durée d'ouverture électro-vanne: 0 à 999 ms par pas d'1 ms.
- Réglage du temps mort: 0 à 999 ms par pas d'1 ms.
- Réglage durée d'arc: tableau ci-dessous:
- Sécurité: Sortie HT court-circuitée hors cycle.

Gamme arc	Etendue	Pas	Observations
0,000	0 à 999 $\mu$ s	1 $\mu$ s	imprécis < 50 $\mu$ s
0,00	0 à 9,99 ms	10 $\mu$ s	
0,0	0 à 99,9 ms	100 $\mu$ s	
0	0 à 999 ms	1 ms	

- Sorties mesure: tableau ci-dessous:

Marquage	Fonction	Niveau	Charge
Iarc	Courant d'arc	0,1V/A	10K $\Omega$ mini
Uarc	tension d'arc	0,1V/V	1M $\Omega$ mini
Synchro	Départ du cycle	0 à 5V	40mA maxi

**III - Diagramme de fonctionnement**



\* Jusqu'à 10 s pour longues durées d'arc



## 9 Annexe 2 : Logiciel « OMA Voigt »

La Figure 9-1 représente le logiciel développé au laboratoire dans l'environnement LABWINDOWS permettant de réaliser l'inversion d'Abel de manière automatique, de sorte qu'un spectre peut être traité en quelques minutes. Ce logiciel permet aussi de déconvoluer les profils de Voigt afin de déterminer les élargissements Stark servant dans le calcul des densités électroniques.

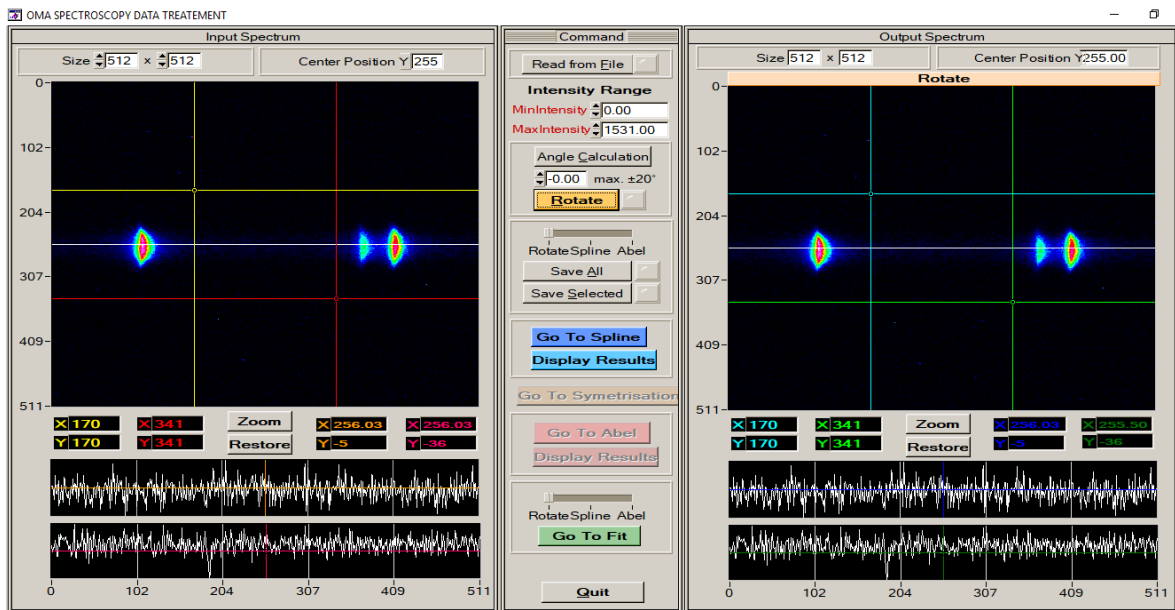


Figure 9-1 : Logiciel d'inversion d'Abel et de déconvolution des spectres d'émission.

## 10 Annexe 3 : Logiciel « DThomson »

La *Figure 10-1* représente le logiciel d'ajustement des spectres diffusion Thomson (Thomson Scattering : TS) utilisant la fonction de densité spectrale des électrons comme suit : la température électronique ( $T_e^{TS}$ ) et la densité électronique  $N_e^{TS}$  sont obtenus de façon indirecte à partir des coefficients d'ajustement  $a_0$ ,  $a_1$ ,  $a_2$  et  $a_3$ .

$$y = S(k, \Delta\omega) = S(a_1, a_2) \times a_0 + a_3 \quad 10.1$$

Les coefficients  $a_0$  et  $a_3$  sont respectivement liés à la normalisation et à la ligne de base du facteur de forme  $S$ , alors que  $a_1$  et  $a_2$  sont donnés par les relations suivantes :

$$a_1 = \alpha^2 = \frac{\pi q_e^2 c^2}{k_B \omega_0^2 \sin^2(\frac{\theta}{2})} \frac{N_e^{DT}}{T_e^{DT}} \quad 10.2$$

$$a_2 = \frac{1}{4} \frac{c^2}{\sin^2(\frac{\theta}{2})} \frac{m_e}{k_B} \frac{1}{T_e^{DT}} \quad 10.3$$

Et en récrivant les expressions ci-dessus on arrive aux valeurs de  $N_e^{DT}$  et  $T_e^{DT}$

$$N_e^{DT} = \frac{m_e \omega_0^2 a_1}{4\pi q_e^2 a_2} \quad 10.4$$

$$T_e^{DT} = \frac{1}{4} \frac{c^2}{\sin^2(\frac{\theta}{2})} \frac{m_e}{k_B} \frac{1}{a_2} \quad 10.5$$

# Annexes

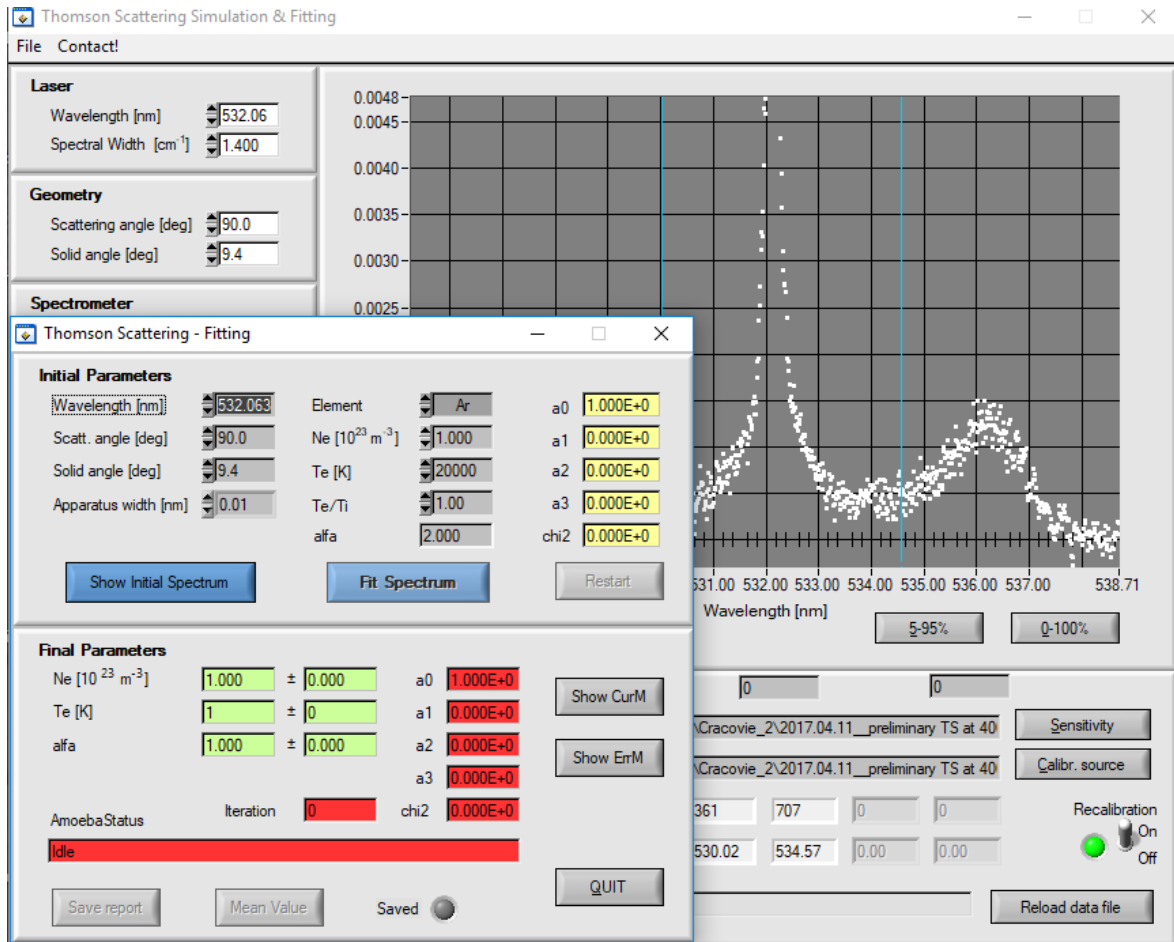


Figure 10-1 : Logiciel d'ajustement des spectres de diffusion Thomson.

## 11 Annexe 4 : Liste des communications et des publications durant la thèse

- **Mamadou Sankhé**, Stephane Bernard, Maxime Wartel, Stéphane Pellerin, and Philippe Gillard. *Characterization of a Spark Discharge for Dust Cloud Ignition*. Contributions to Plasma Physics, 59, 326-339, 2019.
- **Mamadou Sankhé**, Stephane Bernard, Stéphane Pellerin, Philippe Gillard, and Maxime Wartel. *Pyrometric and spectroscopic measurements of temperatures of Metallic Dust Combustion Ignited by Characterized Spark Discharge in a Hartmann tube*. IEEE Transactions on Plasma Science, 47, 488-499, 2019.
- **Mamadou Sankhé**, Tomasz Pięta, Stéphane Pellerin, Krzysztof Dzierżęga and Maxime Wartel : *Investigations of Stark Profiles of Argon Lines using Laser-Induced Plasma, Thomson Scattering and Optical Emission Spectroscopy*. 15<sup>th</sup> International High-Tech Plasma Processes Conference (HTPP 2018), Jul. 2018, Toulouse, France. [Poster]
- **Mamadou Sankhé**, Tomasz Pięta, Stéphane Pellerin, Krzysztof Dzierżęga et Maxime Wartel : *Etude d'un plasma induit par laser dans l'argon par Spectroscopie optique d'émission et par diffusion Thomson*. Journées LIBS France 2017, 8 et 9 Novembre 2017, Université de Rouen, Saint-Etienne du Rouvray, France. [Présentation orale]
- **Mamadou Sankhé**, Tomasz Pięta, Stéphane Pellerin, Krzysztof Dzierżęga and Maxime Wartel : *Studies of laser-induced plasma in argon using emission spectroscopy and laser Thomson scattering : thermodynamic equilibrium and plasma heating by the probe laser beam*. XXXIII International Conference on Phenomena in Ionized Gases (ICPIG 2017), Sep. 2017, Estoril, Portugal. [Poster]
- **Mamadou Sankhé**, Stéphane Bernard, Stéphane Pellerin, Philippe Gillard and Maxime Wartel : *Diagnostics on aluminum dust explosion ignited by spark discharge*. XXXIII International Conference on Phenomena in Ionized Gases (ICPIG 2017), Sep. 2017, Estoril, Portugal. [Poster]
- T. Pięta, K. Dzierżęga, W. Zawadzki, A. Farah-Sougueh, **M. Sankhé**, S. Pellerin and B. Pokrzywka : *Studies of thermodynamic equilibrium in laser-induced plasma in argon using emission spectroscopy and laser Thomson scattering*. 9<sup>th</sup> International Conference on Laser-Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS 2016), Sep. 2016, Chamonix-Mont-Blanc, France. [Poster]
- **Mamadou Sankhé**, Stéphane Bernard, Stéphane Pellerin, Philippe Gillard et Maxime Wartel : *Diagnostic d'explosions de poussières d'aluminium générées par une décharge d'étincelle*. 14<sup>e</sup> Colloque sur les Arcs Électriques (CAE 2019), 18 et 19 Mars 2019, Bourges, France. [Présentation orale]
- **Mamadou Sankhé**, Tomasz Pięta, Stéphane Pellerin, Krzysztof Dzierżęga, Maxime Wartel et Steve Rudz : *Étude des paramètres Stark de raies d'argon dans une large gamme de températures et de densités électroniques*. 14<sup>e</sup> Colloque sur les Arcs Électriques (CAE 2019), 18 et 19 Mars 2019, Bourges, France. [Présentation orale]

**Mamadou Lamine SANKHE**

## **Caractérisations spatio-temporelles de milieux plasmagènes transitoires à hautes énergies**

Résumé :

Les milieux plasmagènes transitoires générés par décharge électrique pointe-pointe et par claquage laser sont utilisés dans des applications d'allumage de mélanges combustibles ou à des fins d'analyses telles que la spectroscopie de plasma induit par laser (LIBS). Parallèlement à leurs importants intérêts scientifiques et technologiques, ces milieux restent difficiles à appréhender en raison de leur caractère transitoire et des gradients importants qui les caractérisent. De plus, les hypothèses d'Équilibre Thermodynamique Local (ETL), souvent faites dans le cadre de leur étude, ne sont pas toujours vérifiées.

Afin de mieux connaître ces milieux plasmagènes transitoires, deux techniques complémentaires de caractérisations spectroscopiques ont été mises en œuvre : la Spectroscopie Optique d'Émission (SOE) et la Diffusion Thomson (DT).

L'utilisation combinée de la SOE (fondée sur des hypothèses complémentaires validant l'ETL) et de la DT (supposant uniquement une distribution maxwellienne des vitesses translationnelles des particules), doit permettre de valider les conditions d'ETL dans les plasmas étudiés et de fournir des données d'entrée réalistes pour les modélisations.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons étudié une décharge électrique pointe-pointe, utilisée dans l'allumage de poudres métalliques, et des plasmas de claquage et d'ablation induits par laser, utilisés pour les applications LIBS.

Mots clés : décharge électrique, plasma induit par laser, LIBS (Laser-Induced Breakdown Spectroscopy), spectroscopie optique d'émission, diffusion Thomson, équilibre thermodynamique local.

## **Spatio-temporal characterizations of high-energy transient plasmagenic media**

Abstract :

The transient plasmagenic media generated by tip-tip electric discharge and laser breakdown are used in fuel mixture ignition applications or for analytical purposes such as Laser-Induced Plasma Spectroscopy (LIBS). In addition to their important scientific and technological interests, these media are still difficult to grasp because of their transient nature and the important gradients that characterize them. In addition, the hypotheses of Local Thermodynamic Equilibrium (LTE), often made as part of their study, are not always verified.

In order to better understand these transient plasmagenic media, two complementary spectroscopic characterization techniques have been implemented: Optical Emission Spectroscopy (OES) and Thomson Scattering (TS).

The combined use of OES (based on complementary hypotheses validating LTE) and TS (assuming only a Maxwellian distribution of translational velocities of particles), should make it possible to validate the conditions of LTE in the plasmas studied and of provide realistic input data for modeling.

In this manuscript, we studied a tip-tip electrical discharge, used in the ignition of metal powders, and laser-induced breakdown and ablation plasmas, used for LIBS applications.

Keywords : electrical discharge, laser-induced plasma, Laser-Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS), optical emission spectroscopy, Thomson scattering, local thermodynamic equilibrium.



GREMI, UMR 7344, 14 Rue d'Issoudun, 45067 Orléans, France